

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 06-267555

(43)Date of publication of application : 22.09.1994

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

H01M 4/86

H01M 8/10

(21)Application number : 05-075115

(71)Applicant : MITSUBISHI ELECTRIC CORP

(22)Date of filing : 10.03.1993

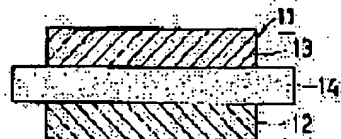
(72)Inventor : MAEDA HIDEO  
MITSUTA KENRO  
URUSHIBATA HIROAKI

## (54) ELECTROCHEMICAL DEVICE

## (57)Abstract:

PURPOSE: To obtain an electrochemical device which has an excellent electric property, and can realize mass production while maintaining the mechanical strength and the chemical stability.

CONSTITUTION: On both sides of a solid high polymer electrolyte 14, gas diffusion electrodes 12 and 13 which are composed of a woven or nonwoven fabric of a metallic fiber are provided. In this case, the gas diffusion electrodes may be composed by combining either one sort, or two sorts or more, of a mixing woven fabric or mixing nonwoven fabric of a metallic fiber and an organic fiber, a fabric made by fluorinating a metallic fiber, a fabric carrying catalyst particles, and a metallic fiber coated with other metal. And the electrode may be divided into plural parts, bent in a specific form, or provided with plural through holes, or it may be held by elastic collectors.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 28.05.1998

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3242736

[Date of registration] 19.10.2001

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of]

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-267555

(43)公開日 平成6年(1994)9月22日

(51)Int.Cl.<sup>5</sup>

H01M 8/02  
4/86  
8/10

識別記号

E 8821-4K  
M  
8821-4K

庁内整理番号

FI

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数17 FD (全17頁)

(21)出願番号 特願平5-75115

(22)出願日 平成5年(1993)3月10日

(71)出願人 000006013

三菱電機株式会社  
東京都千代田区丸の内二丁目2番3号

(72)発明者 前田 秀雄

尼崎市塚口本町8丁目1番1号 三菱電機  
株式会社中央研究所内

(72)発明者 光田 憲朗

尼崎市塚口本町8丁目1番1号 三菱電機  
株式会社中央研究所内

(72)発明者 漆畑 広明

尼崎市塚口本町8丁目1番1号 三菱電機  
株式会社中央研究所内

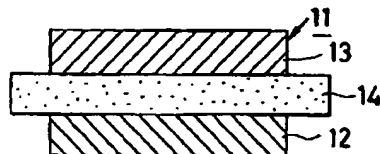
(74)代理人 弁理士 田澤 博昭 (外1名)

(54)【発明の名称】 電気化学デバイス

(57)【要約】

【目的】 電気的特性に優れ、機械的強度および化学的安定性を保ちながら、大量生産が可能な電気化学デバイスを得る。

【構成】 固体高分子電解質14の両面部に、金属繊維の織布または不織布により構成したガス拡散電極12、13を設けた。また、ガス拡散電極は、金属繊維と有機繊維の混毛織布または混毛不織布、金属繊維をフッ素化したもの、触媒粒子を担持したもの、金属繊維に他の金属をメッキしたもののいずれか1種または2種以上の組合せとしてもよい。また、電極は複数に分割したもの、屈曲させたもの、複数の貫通孔を有するもののいずれかとしてもよく、また弾性を有する集電体により挟持してもよい。



11: 電気化学デバイス

12,13: 金属繊維電極基材(ガス拡散電極)

14: 固体高分子電解質膜

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 固体高分子電解質の両面部にガス拡散電極を設けた電気化学デバイスにおいて、前記ガス拡散電極を金属繊維の織布または不織布のいずれかとしたことを特徴とする電気化学デバイス。

【請求項2】 固体高分子電解質の両面部にガス拡散電極を設けた電気化学デバイスにおいて、前記ガス拡散電極を金属繊維と有機繊維の混毛織布または混毛不織布のいずれかとしたことを特徴とする電気化学デバイス。

【請求項3】 前記金属繊維は下記イ～ホのいずれか1種または2種以上であることを特徴とする請求項1または2のいずれか1項記載の電気化学デバイス。

イ. オーステナイト系ステンレススチール

ロ. 周期表5A族元素

ハ. 周期表6A族元素

ニ. 周期表8族元素

ホ. 周期表1B族元素

【請求項4】 前記金属繊維をフッ素化したことを特徴とする請求項1、2または3のいずれか1項記載の電気化学デバイス。

【請求項5】 前記有機繊維は親水性繊維であることを特徴とする請求項2ないし4のいずれか1項記載の電気化学デバイス。

【請求項6】 前記有機繊維は親水性繊維であることを特徴とする請求項2、3または4のいずれか1項記載の電気化学デバイス。

【請求項7】 前記ガス拡散電極に触媒粒子を担持したことを特徴とする請求項1～6のいずれか1項記載の電気化学デバイス。

【請求項8】 前記触媒粒子は周期表8族元素であることを特徴とする請求項7記載の電気化学デバイス。

【請求項9】 前記金属繊維に、該金属繊維と異なる金属をメッキしたことを特徴とする請求項1、2、3または4のいずれか1項記載の電気化学デバイス。

【請求項10】 前記金属は、周期表8族元素、周期表1B族元素から選択された1種以上であることを特徴とする請求項9記載の電気化学デバイス。

【請求項11】 固体高分子電解質の両面部にガス拡散電極を設けた電気化学デバイスにおいて、前記ガス拡散電極の少なくとも一方は、同一平面内に形成され電子的に絶縁された複数の電極部としたことを特徴とする電気化学デバイス。

【請求項12】 前記電極部の少なくとも1つの上部位置に、該電極部を全体的に覆い、かつ、気密性を有する封止部を設けたことを特徴とする請求項11記載の電気化学デバイス。

【請求項13】 固体高分子電解質の両面部にガス拡散電極を設けた電気化学デバイスにおいて、前記ガス拡散電極の少なくとも一方に、複数の貫通孔を形成し、これ\*

アノード反応

\*ら貫通孔に前記固体高分子電解質の一部を浸入させたことを特徴とする電気化学デバイス。

【請求項14】 固体高分子電解質の両面部にガス拡散電極を設けた電気化学デバイスにおいて、前記ガス拡散電極の少なくとも一方の表面に、親水性繊維の織布または不織布のいずれかからなる層を形成したことを特徴とする電気化学デバイス。

【請求項15】 固体高分子電解質の両面部にガス拡散電極を設けた電気化学デバイスにおいて、前記ガス拡散電極を屈曲させて前記固体高分子電解質と一体化したことを特徴とする電気化学デバイス。

【請求項16】 前記ガス拡散電極は、請求項1ないし10のいずれか1項記載のガス拡散電極であることを特徴とする請求項15記載の電気化学デバイス。

【請求項17】 固体高分子電解質の両面部にガス拡散電極を設けた電気化学デバイスにおいて、前記固体高分子電解質及びガス拡散電極を、弾性を有する集電体により挟持したことを特徴とする電気化学デバイス。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

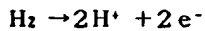
【産業上の利用分野】この発明は機械的強度及び化学的安定性に優れた電気化学デバイスに係り、特に、電気化学的な反応を利用して発電する燃料電池、ガスを精製する精製装置、ガスを検知するガスセンサ等に用いて好適な電気化学デバイスに関するものである。

## 【0002】

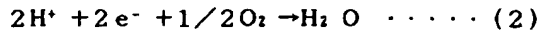
【従来の技術】電気化学デバイスは、電気化学的な反応を利用して発電したり、ガスを精製したりするための基本的な反応が行われるデバイスであり、燃料電池、ガス精製装置、ガスセンサ等に広く適用されている。例えば燃料電池は、電解質体の両面に接触した電極の一方に燃料を他方には酸化剤を供給し、燃料の酸化を電池内で電気化学的に反応させることにより化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換するものであるが、固体高分子型燃料電池で例をあげると、電解質体としての固体高分子膜とガス拡散電極、あるいはその一体化物を指すことになる。

【0003】図16は典型的な、プロトン導電性の固体高分子電解質型燃料電池を構成する電気化学デバイス1の断面図である。図において2は固体高分子電解質膜（以下、電解質膜と略称する）、3はアノード電極、4はカソード電極を示す。電解質膜2はパーフルオロスルホン酸膜、また、アノード電極3及びカソード電極4は炭素繊維に白金触媒を担持しているものが使われている。次に動作について説明する。アノード電極3に水素ガス、カソード電極4に酸素を供給して外部回路を通してアノード電極3およびカソード電極4より電流を取り出すと下記のような反応が起こる。

3



カソード反応



このときアノード電極3上で水素はプロトンとなり、水を伴って電解質膜2中をカソード電極4まで移動しカソード電極4上で酸素と反応して水を生ずる。従って、この反応を生じている時、電極の細孔内ではガスと液体の水が出入りし、かつ電極の基材内は電子が流れている。従って、このような反応を円滑に行なうためには、反応によって生成あるいは消費する反応活性物質の移動を阻害しないようにすることと、電子の移動を阻害しないようにすることが必要である。前記活性物質の移動に関しては水が液体で存在する場合には液滴によって反応ガスの流通が阻止されることがあり、水の移動は特に重要である。

【0004】そのために、水を圧力や流路構造等の機械的な力で移動を促進させる方法としては、すでに、特開平1-309263号公報、特開平2-86071号公報、特開平2-260371号公報、特開平3-102774号公報等が提案されている。また乾燥剤や親水性材料を用いて水との親和性の違いで移動を促進する手段としては特開平1-140562号公報、特開平3-149762号公報、特開平3-182052号公報等が提案されている。電子の移動としては電極に導電性の材料を使用することになり、従って電極を製造する場合は、例えば特開平3-25856号公報に示されるように、導電性のカーボン粉末と親水性材料や補強剤を混練して結着するような方法があり、また金属を結着する方法としては特開平2-152166号公報等が提案されている。また、弱い電極材料を剛性構造物で支持する方法もあり、例えば特開平3-149762号公報が提案されている。また、電気化学デバイスには様々な用途があり、上記の各特許に記されているものの他にも、特公昭62-59184号公報のガス精製装置や、特開昭61-216714号公報の除湿素子等が提案されている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】従来の燃料電池等に使われている電気化学デバイスは以上のように構成されているので、上記のように電極は構造物としては機械的にもろく、変形させるとひび割れを起こしたり欠落を起こしたりする恐れがあるなどの問題点があった。

【0006】この発明は上記のような問題点を解消するためになされたもので、電気的特性に優れ、機械的強度および化学的安定性を保ちながら、大量生産が可能な電気化学デバイスを得ることを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】請求項1の発明に係る電気化学デバイスは、固体高分子電解質の両面にガス拡散電極を設け、該ガス拡散電極を金属繊維の織布または\*

4

..... (1)

\*不織布のいずれかとしたものである。

【0008】請求項2の発明に係る電気化学デバイスは、固体高分子電解質の両面にガス拡散電極を設け、該ガス拡散電極を金属繊維と有機繊維の混毛織布または混毛不織布のいずれかとしたものである。

【0009】請求項3の発明に係る電気化学デバイスは、前記金属繊維を下記イ〜ホのいずれか1種または2種以上としたものである。

イ. オーステナイト系ステンレススチール

ロ. 周期表5A族元素  $\checkmark$  etc

ハ. 周期表6A族元素 Cr etc

ニ. 周期表8族元素 Fe-Co-Ni etc

ホ. 周期表1B族元素 Cu etc

【0010】請求項4の発明に係る電気化学デバイスは、前記金属繊維をフッ素化したものである。

【0011】請求項5の発明に係る電気化学デバイスは、前記有機繊維を親水性繊維としたものである。

【0012】請求項6の発明に係る電気化学デバイスは、前記有機繊維を親水性繊維としたものである。

【0013】請求項7の発明に係る電気化学デバイスは、前記ガス拡散電極に触媒粒子を担持したものである。

【0014】請求項8の発明に係る電気化学デバイスは、前記触媒粒子を周期表8族元素としたものである。

【0015】請求項9の発明に係る電気化学デバイスは、前記金属繊維に、該金属繊維と異なる金属をメッキしたものである。

【0016】請求項10の発明に係る電気化学デバイスは、前記金属を周期表8族元素、周期表1B族元素から選択された1種以上としたものである。

【0017】請求項11の発明に係る電気化学デバイスは、固体高分子電解質の両面にガス拡散電極を設け、該ガス拡散電極の少なくとも一方を、同一平面内に形成され電子的に絶縁された複数の電極部としたものである。

【0018】請求項12の発明に係る電気化学デバイスは、前記電極部の少なくとも1つの上部位置に、該電極部を全体的に覆い、かつ、気密性を有する封止部を設けたものである。

【0019】請求項13の発明に係る電気化学デバイスは、固体高分子電解質の両面にガス拡散電極を設け、該ガス拡散電極の少なくとも一方に、複数の貫通孔を形成し、これら貫通孔に前記固体高分子電解質の一部を浸入させたものである。

【0020】請求項14の発明に係る電気化学デバイスは、固体高分子電解質の両面にガス拡散電極を設け、該ガス拡散電極の少なくとも一方の表面に、親水性繊維

の織布または不織布のいずれかからなる層を形成したものである。

【0021】請求項15の発明に係る電気化学デバイスは、固体高分子電解質の両面にガス拡散電極を設け、該ガス拡散電極を屈曲させて前記固体高分子電解質と一体化したものである。

【0022】請求項16の発明に係る電気化学デバイスは、前記ガス拡散電極を、請求項1ないし10のいずれか1項記載のガス拡散電極としたものである。

【0023】請求項17の発明に係る電気化学デバイスは、固体高分子電解質の両面にガス拡散電極を設け、前記固体高分子電解質及びガス拡散電極を、弾性を有する集電体により挟持したものである。

【0024】

【作用】請求項1の発明における電気化学デバイスは、金属繊維の織布または不織布のいずれかとしたガス拡散電極により、固体高分子電解質が温度や含水量の変化により変形しようとしても前記ガス拡散電極が機械的に該固体高分子電解質の変形を防止する。

【0025】請求項2の発明における電気化学デバイスは、金属繊維と有機繊維の混毛織布または混毛不織布のいずれかとしたガス拡散電極により、機械的に固体高分子電解質の変形を防止するとともに、親水性の異なる複数種の繊維により、電極上で生じた水が、一方の繊維に集中して集まり、他方の繊維には気体の通る空間が生じ、反応に必要な気体が反応部分に容易に流入し、反応に必要な水を液体の状態で容易に反応部に補給することができる。

【0026】請求項3の発明における電気化学デバイスは、金属繊維を下記イ〜ホのいずれか1種または2種以上としたことにより、ガス拡散電極の電気抵抗を小さくさせ、電圧ロスを低減する。

イ. オーステナイト系ステンレススチール

ロ. 周期表5A族元素、すなわち V、Nb、Taの3種

ハ. 周期表6A族元素、すなわち Cr、Mo、Wの3種

ニ. 周期表8族元素、すなわち Fe、Co、Ni、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Ptの9種

ホ. 周期表1B族元素、すなわち Cu、Ag、Auの3種

【0027】請求項4の発明における電気化学デバイスは、金属繊維をフッ素化したことにより、ガス拡散電極が機械的に固体高分子電解質の変形を防止し、且つ電気抵抗を小さくさせるとともに、フッ素化により親水性を付与するので、電気化学反応で電極上に生じた水が、電極基材の空間内を球状になって移動し、反応に必要な気体が反応部分に流入することが容易となる。

【0028】請求項5の発明における電気化学デバイスは、有機繊維を親水性繊維としたことにより、電気化学

反応で電極上に生じた水が、電極基材の空間内を球状になって移動し、反応に必要な気体が反応部分に流入することが容易となる。

【0029】請求項6の発明における電気化学デバイスは、有機繊維を親水性繊維としたことにより、ガス拡散電極が機械的に固体高分子電解質の変形を防止し、且つ電気抵抗を小さくさせるとともに、親水性繊維があるので、電極上に生じた水が、親水性の繊維に集中して集まり、金属繊維には気体の通る空間が生じ、反応に必要な気体が反応部分に容易に流入し、反応に必要な水を液体の状態で容易に反応部に補給する。

【0030】請求項7の発明における電気化学デバイスは、ガス拡散電極に触媒粒子を担持したことにより、触媒作用により電気化学反応がスムーズに進行し、反応に必要な電圧が低下する。

【0031】請求項8の発明における電気化学デバイスは、触媒粒子を周期表8族元素としたことにより、Pt等の触媒作用により電気化学反応がさらにスムーズに進行し、反応に必要な電圧がさらに低下する。

【0032】請求項9の発明における電気化学デバイスは、金属繊維に、該金属繊維と異なる金属をメッキしたことにより、繊維を被覆した金属が腐食を防止し、また、該金属が有する触媒作用により電気化学反応がスムーズに進行し、反応に必要な電圧が低下する。

【0033】請求項10の発明における電気化学デバイスは、前記金属を周期表8族元素、周期表1B族元素から選択された1種以上としたことにより、該金属が金属繊維の腐食を効果的に防止し、また、触媒作用により電気化学反応がさらにスムーズに進行し、反応に必要な電圧がさらに低下する。

【0034】請求項11の発明における電気化学デバイスは、ガス拡散電極の少なくとも一方を、同一平面内に形成され電子的に絶縁された複数の電極部としたことにより、それぞれの電極部の電圧が変化する。

【0035】請求項12の発明における電気化学デバイスは、電極部に、該電極部を全体的に覆い気密性を有する封止部を設けたことにより、この封止されている電極部が空間内のガス組成特有の電位を示す。

【0036】請求項13の発明における電気化学デバイスは、ガス拡散電極の少なくとも一方に形成した複数の貫通孔に固体高分子電解質の一部を浸入させたことにより、ガス拡散電極と固体高分子電解質との密着性が向上し、該固体高分子電解質の変形を防止する。

【0037】請求項14の発明における電気化学デバイスは、ガス拡散電極の表面に親水性繊維の織布または不織布からなる層を設けたことにより、電極上の水分を親水性繊維が吸い取り、前記ガス拡散電極と固体高分子電解質との界面付近に水滴が滞留するのを防止する。

【0038】請求項15の発明における電気化学デバイスは、ガス拡散電極を屈曲させて固体高分子電解質と一

体化したことにより、単位面積当りの電極面積が拡大し、電気化学反応がスムーズに進行する。

【0039】請求項16の発明における電気化学デバイスは、請求項1～10のいずれか1項記載のガス拡散電極を用いたことにより、機械的に固体高分子電解質の変形を防止するとともに、単位面積当りの電極面積が拡大し、電気化学反応がスムーズに進行する。

【0040】請求項17の発明における電気化学デバイスは、固体高分子電解質及びガス拡散電極を、弾性を有する集電体で挟持したことにより、ガス拡散電極は固体高分子電解質に一定の圧力で押し付けられ、該固体高分子電解質、ガス拡散電極、集電体それぞれの間の接触抵抗が低下し、電気化学反応に必要な電圧が低下する。

【0041】

【実施例】

実施例1. 以下、この発明の一実施例を図について説明する。図1は本発明の電気化学デバイス11の概念的な断面図であり、図において12、13は金属繊維電極基材（ガス拡散電極）、14は固体高分子電解質膜である。金属繊維としてはSUS316Lの、直径12μm、長さ50～100mmの単繊維を開繊維にかけた後に焼結した、目付け400g/cm<sup>2</sup>の布を用いた。固体高分子電解質膜14にパーフルオロスルホン酸膜の市販品であるデュボン社のナフィオン117を用いた場合に、電極基材12、13と高分子膜14を190℃で50kg/cm<sup>2</sup>の面圧でホットプレスを行って一体化した場合には、電極基材12、13の繊維が高分子膜14に50μmも食い込んでいた。

【0042】次に動作について説明する。この電気化学デバイス11は、10cm角の大きさの一体化物として製造した場合、電極基材の鋼性により一端のみを手で持つて取り扱っても、離れたり再生不可能な歪をおこすことはなかった。さらに、この電気化学デバイス11を水中浸漬後、100℃で空中乾燥する操作を3回繰り返したが、電極基材12、13と高分子膜14は全く分離せず、また、形状も変化しなかった。この試験を従来の電極基材を用いたものでおこなうと、電極基材にヒビがはいり、基材が剥がれ落ちてしまった。また、本発明の電極基材12、13間の電気抵抗を調べたところ、低い抵抗がこの浸漬・乾燥の間でも保持できた。高分子電解質膜14自体は、含水率によって膨張・収縮するので、この試験により高分子膜14と基材12、13間の密着は、非常に強く、金属繊維の強度により、高分子膜14の変形を防止できたと考えられる。また、SUS316L自体の電気導度はカーボンの電気導度の10倍程度もあるので、基材中の電子の移動がスムーズに行われ、電圧ロスを低く保つことができる。尚、金属繊維は今回のものより小さい径のものを用いると単位体積当りの表面積が増加して、反応面積が増加するが、気体の透過抵抗が増大するので、その際は今回よりも小さな目付

けの布を用いることが望ましい。逆に繊維径が大きいものは、大きな目付けのものも使用できる。また、フレーム等で締め付けることにより、電極基材自体の鋼性がそれほど必要でないときには、焼結を行わないフェルトを使うことも可能である。

【0043】実施例2. 以下、この発明の実施例2について説明する。この電気化学デバイスは、実施例1の電気化学デバイス11の電極基材12、13を構成する金属繊維をフッ素化したものであり、形状、機械的な動作については実施例1の電気化学デバイス11と同様である。金属繊維布のフッ素化は、繊維をフッ素あるいはフッ化水素ガス中に置くことにより行った。金属繊維は板と違って反応面積が大きいので、フッ素あるいはフッ化水素ガスの濃度は数%以下に抑えるか、真空中に引いた状態で、金属繊維表面の単原子層のモル数と同モル数以下の反応ガスを徐々に導入して行なうことが望ましい。

【0044】次に動作について説明する。この実施例の電気化学デバイス11に水を吹き付けた場合、水は電極基材12、13上を球状になって転がる。従って、この電気化学デバイス11を使用した装置に水が付着しても、電極基材12、13内には水が入り込まないので、ガスの通る空間が確保されており、反応ガスや被検知ガスが、反応部に絶えず供給される。また、反応によって水が生ずる場合、電極基材12、13は、フッ素化により水を弾く性質を有しているために、反応によって生じた水は、球状になって電極基材12、13上を移動し、電極基材12、13内には空間が多数保持されることになり、その中を反応ガスが容易に流通できるので、反応に必要なガスが反応部である電解質膜14と電極基材12、13との界面に供給され続けるので、反応が順調に行われる。

【0045】実施例3. 以下この発明の実施例3について説明する。図2はこの実施例の電気化学デバイス15の断面模式図であり、図において、16、17は電極基材（ガス拡散電極）、21、31は電極基材16、17中の金属繊維、22、32は電極基材16、17中の有機繊維を示す。有機繊維22、32としては親水性のフッ素系繊維を用い、重量比で10%以下で混毛した。

【0046】次に動作について説明する。この実施例における電気化学デバイス15に水を吹き付けた場合、水は親水性のフッ素系繊維があるために、電極基材16、17上を球状になって転がる。従って、この電気化学デバイス15を使用した装置に水が付着しても、電極基材16、17内には水が入り込まないので、ガスの通る空間が確保されており、反応ガスや被検知ガスが、反応部に絶えず供給される。また、反応によって水が生ずる場合、フッ素系繊維は、水を弾く性質を有しているために、反応によって生じた水は、一部はフッ素系繊維上を球状になって電極基材16、17上を移動し、また一部は金属繊維上に引き寄せられるので、電極基材16、1

7全体では空間が保持されることになり、その中を反応ガスが容易に流通できるので、反応に必要なガスが反応部である電解質膜14と電極界面に供給され続ける。

【0047】なお、電子は有機繊維中は移動しないので、有機繊維の量をこれ以上多くすることは望ましくない。例えば重量比で10%の場合であっても、フッ素系繊維の比重が約2.1であり、一方金属繊維の比重が8.0であるから、体積比では30%にもなり、繊維の絡み方次第では絶縁層を形成することもある。その場合には電極基材中の電子の移動が妨げられて特性が低下する。

【0048】次に、上記電気化学デバイス15の変形実施例について説明する。ここでは、有機繊維22、32として親水性のアラミド繊維を用い、重量比で3%以下で混毛した。

【0049】次に動作について説明する。この発明における電気化学デバイス15に水を吹き付けた場合、水は親水性のアラミド繊維に吸収されて、電極基材16、17中を電解質膜14に向かって移動する。従って、この電気化学デバイスに液体の水を供給すると、ガスの通る空間を確保しつつ、水を反応部に供給することができ、また、反応によって水が生ずる場合、有機繊維の方に水が引き寄せられるので、電子の受渡しと電気化学反応が生じる金属繊維と電解質界面近傍からガスの流通を妨げる水が取り除かれ、反応に必要なガスが反応部である電解質膜14と電極界面に供給され続ける。

【0050】また、ここでも電子は有機繊維中は移動しないので、有機繊維の量をこれ以上多くすることは望ましくない。例えばアラミド繊維は比重が1.5と小さく、また、水分で覆われて実質体積が大きくなるので、含有量を極力小さくする必要がある。また、親水性の有機繊維としては、この他にもポリエステルやアクリル等の合成繊維の他に綿や麻等の天然繊維を用いることも可能であるが、電解質膜14の官能基によって分解を生ずるようなものは不適當である。

【0051】実施例4. 以下、この発明の実施例4について説明する。この電気化学デバイスは、実施例3の電気化学デバイス15の金属繊維21、31をフッ素化したものであり、形状、機械的な動作については実施例3の親水性繊維を用いた電気化学デバイス15と同様である。また、金属繊維のフッ素化は、実施例2の布のフッ素化と同様である。

【0052】次に動作について説明する。この実施例における電気化学デバイス15に水を吹き付けた場合、水は親水性の金属繊維があるために、電極基材16、17上を転がるので、この電気化学デバイス15を使用した装置に水が付着しても、電極基材16、17内には水が入り込まずに、ガスの通る空間が確保され、反応ガスや被検知ガスは、反応部に絶えず供給される。一方、反応によって水が生ずる場合、有機繊維の方に水が引き寄せ

られるので、電子の受渡しと電気化学反応が生じる金属繊維と電解質界面近傍からガスの流通を妨げる水が取り除かれ、反応に必要なガスが反応部である電解質膜14と電極基材16、17界面に供給され続ける。また、ここでも電子は有機繊維中は移動しないので、有機繊維の量を必要以上に多くすることは望ましくない。

【0053】実施例5. 以下、この発明の実施例5について説明する。図3はこの実施例の電気化学デバイス41の断面模式図であり、図において、42、43は実施例1の電極基材12、13各々に触媒粒子を担持した電極基材（ガス拡散電極）である。触媒粒子としては白金黒（白金微粒子）を使用した。担持の方法には色々あるが、高分子電解質を5%含む低級アルコール溶液に対して重量比で白金黒を30%懸濁させた液を、白金が電極基材に1cm<sup>2</sup>あたり4mgになるように塗布し、乾燥させた。そして実施例1記載のホットプレスにより、電極基材42、43と、電解質膜14とを一体化させた。

【0054】次に動作について説明する。この実施例の電気化学デバイス41の一方の電極基材42に水素を流し、もう一方の電極基材43に電極基材42に対して負の電位をかけた場合、実施例1の電気化学デバイス11では、両極間の電位を100mV以上かけた時に初めて電流が流れ、電極基材13側から水素が検出されたが、この実施例では、10mV以上で電流が流れ、電極基材43側から水素が発生することが確認できた。これにより、電極基材42、43に担持されている白金が触媒となつて、電気化学反応が促進されることが、確認できた。なお、触媒に関しては同じ白金を触媒とした場合でもカーボン微粒子に白金を担持させたいわゆる白金担持カーボン触媒は比重が小さいのでこの方法で塗布すると、塗布する液中の触媒量は白金黒の時の3割程度になり、20%担持の触媒を使った場合の白金量は白金黒の時と比べて5%程度に減少する。従って白金量は大幅に節約できるが、触媒効果が多少減少する。触媒としては白金に限らず、白金元素や、それらを含む合金、または一般的に市販されている触媒効果を有するものであれば、他の種類の触媒粒子をつかっても差し支えはないが、塗布による基材への担持法を採る場合には、液の調整を行なう必要がある。

【0055】実施例6. この電気化学デバイスは、実施例1の電極基材12、13各々に触媒効果のある白金をメッキしたものである。白金メッキを行なうには、まず電極基材12、13の表面の不純物を取り去るために脱脂洗浄をする。この状態では電極基材12、13がメッキ液をはじくことがあるので、電極基材12、13を精製水中で数分間煮沸するか1N塩酸中に数秒間浸漬する。続いてメッキ工程に移る。メッキ液は一般的に市販されている硝酸系の酸性タイプのものをその標準条件で使用したが、その他公知の液組成でも特に問題はない。ただし、布にメッキするために板状のものと違って次の

## 11

ような現象があった。それは、メッキの際に発生する水素気泡が繊維中に留まって繊維表面とメッキ液の接触を妨げ、メッキの進行を阻害するので、メッキ液中の繊維に振動を与えてやる必要がある。また、電極基材12、13は柔軟であるので、気泡のついた部分に浮力が働いて浮き上がってくるおそれがあり、基材の4辺あるいは両端を固定して電流を流すことができるような治具を必要とした(図示せず)。メッキ量は電極基材を平板と見なした場合に1 $\mu$ mのメッキ厚みになる量に調整した。もちろんこれより多くてもよいが、触媒効果を考えるならこの量で充分であった。また用途により0.1A/cm<sup>2</sup>以下の低い電流密度で運転するような装置では、メッキ量を極端に減少させても構わない。また、触媒としてその他の元素あるいは合金を用いる場合でも、その組成に応じた公知のメッキ技術を用いればよい。

【0056】次に動作について説明する。触媒効果に関しては実施例5の電気化学デバイス41と同様であるので省略する。この実施例の電極基材を沸騰水に5時間浸漬し、乾燥するという工程を繰り返しても、メッキの剥がれは生じなかった。これは、燃料電池や電解槽のように反応物質の流動が激しい条件で使用しても触媒の脱落がなく、安定した特性を維持できることを示している。

【0057】実施例7。以下、この発明の実施例7について説明する。図4は平面内に電子的に独立した複数の電極部を有する電気化学デバイス45の平面図である。図において、12A、12B、12C、12Dは電子的に独立した同一平面内の電極である。電極材料には厚み\*

$$E = RT/2F \times \ln(P_{H_2}/P_R) \dots\dots (3)$$

【0061】ただし、Rは気体定数、Fはファラデー定数、Tは絶対温度、 $P_{H_2}$ は被検査ガス中の水素ガス分圧、 $P_R$ は純水素の圧力を示す。

【0062】尚、本実施例においては、同一平面内に4つの電極12A~12Dを配しているが、複数の電子的に独立な電極で有れば、それ以上であってもまた、それ以下であってもよい。また、本実施例では、対極3は1枚で構成したが、電極2A、2B、2C、2D各々に対応させて4つに分割し、4つの電子的に独立した電池を構成させることも可能である。その場合には、4つの電池を直列につなぐことにより、平均で4倍の電圧を発生することができる。

【0063】実施例8。以下この発明の実施例8について説明する。図5はこの実施例の電気化学デバイス51の概念を示す図であり、同図(a)はその平面図、同図(b)はその断面図である。図において、12R、12Wは電子的に独立した同一平面内の電極であり、52は電極12Rを外気から遮断する隔壁(封止部)である。電極12R、12Wには電極基材に白金をメッキした実施例6の電極を用いた。組立は10cm角の電極13の上に、12cm角の電解質膜14をのせ、さらに、その上に直径1cmの電極12Rと、直径1.5cmの穴の開いた1※50

## 12

\*300 $\mu$ mのカーボンペーパーを用いた。10cm角の電極13の上に、12cm角の電解質膜14をのせる。さらに、その上に4つの直径4cmの独立電極12A~12Dと、内側に4つの独立電極12A~12Dが入る穴を開けた厚さ250 $\mu$ mのテフロンシート46を同一平面上に並べる。そして実施例1と同様の条件でホットプレスを行った。尚、面圧は独立電極4枚の面積を基準にした。また、電極基材13にガスを流すことができるガス流路と、4つの電極に異なったガスを流せる流路および、それぞれの電極の電圧を読むための端子を設置した(図示せず)。

【0058】次に動作について説明する。電極13には、純粋な水素を流し、独立した電極12A~12Dの各々には燃料電池スタックの4つのセルの燃料排ガスを流した。それぞれの電極2A、2B、2C、2Dと電極13間に生ずる電圧は、それぞれの流路に流れる燃料排ガスの水素分圧に応じて下記の(3)式で示される電圧になる。よって1枚の電気化学デバイスにおいて、4つのガスの濃度を同時に測定することができた。

【0059】ここで、水素濃度を知る方法について説明する。片側の極に純水素を流し、もう一方の極に水素を含んだ被検査ガスを導入すると、ネルンストの式(3)に対応した電位Eが両極間に発生するので、その電圧を測定することにより被検査ガス中の水素濃度を知ることができる。

【0060】

※0cm角の電極12Wを同一平面上に並べる。そして実施例1と同様の条件でホットプレスを行った。尚、面圧は対極13の面積を基準にした。そして電極12Rに外気が流入するのを防ぐために、電圧端子用の穴のあいた厚さ0.2mm、半径1.2cmのシリコンゴム製の半球形のキャップ(隔壁52)をかぶせた。そして、2mmの穴の開いた厚さ1mmのSUS304製パンチングメタルで電極を挟みつけて、両パンチングメタルおよび、電極12Rの電圧を読むための端子を設置した(図示せず)。この時、一方のパンチングメタルは電極12Wと電子的につながっており、もう一方のパンチングメタルは電極13と電子的につながることになり、電極12Rは電圧端子以外は電子的に絶縁された状態になっている。

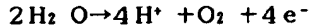
【0064】次に動作について説明する。この電気化学デバイス51を空気中に置いて、電極12W-対極13間に4Vの電位をパンチングメタルを介して印加する。電極13に隣接する空気中の水分は後述する式4に従い、水素イオンとなって電解質膜14中を電極12W、12R側に移動する。電極12Wでは、水素イオンは後述する式5に従って水素に還元されてすぐに空気中の酸素と反応して水となる。一方、電極12Rでは、水素イオンは後述する式7に示すように電子を得て水素にはな



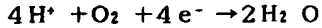
## 13

るが、ゴムキャップ52により、密閉されているので、水素ガスで充満され、過剰な水素のみ、ゴムキャップ52と膜14の間から流出する。

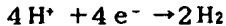
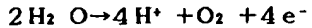
【0065】ここで水素イオンの移動について説明す \*



水素イオンはアノード上で電子を得て水素に還元される※



結局、カソード側の水はアノード側に移動することになり、カソード側に空間の湿度を下げることになる。また、例えば水中で両極に直流電圧を印加すると電気化学 10 反応により、カソードでは水は電子を失って水素イオン★



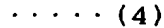
【0066】以上により、電極12Rは水素参照電極となり、電極12Rと対極13の電圧および電極12Rと電極12Wの電圧を測定することにより、この電気化学反応において、各々の極の分極を分離して測定することができる。そこでこの電圧を基準に12W-13間にかける電圧を調整すれば、電極の腐食を引き起こすような異常な電圧を電極にかかる危険を避けることができると 20 ともに、必要最大限の電圧により運転が可能になるので、装置のコンパクト化が可能になる。

【0067】実施例9。以下、実施例9について図に基づき説明する。図6は本実施例の電気化学デバイス53の概念的な断面図であり、図において54、55は貫通孔56を有する電極基材、14は高分子電解質膜である。電極基材としては実施例1で示したSUS316Lの、直径12μm、長さ50~100mmの単繊維を開繊機にかけた後に焼結した、目付け400g/cm<sup>2</sup>の布を用いた。高分子膜14にパーフルオロスルホン酸膜の市 30 販品としてデュボン社のナフィオン117を用いた場合、電極基材54、55と高分子膜14を190℃で50kg/cm<sup>2</sup>の面圧でホットプレスを行って一体化した場合、電極基材の繊維が高分子膜14に50μmも食い込み、さらに、電解質膜14が貫通孔56を埋めるように食い込んでいた。

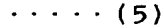
【0068】次に動作について説明する。10cm角の大きさの一体化物の電気化学デバイス53を製造した場合でも、電極基材の鋼性により一端のみを手で取り扱っても、この一体化物は離れたり再生不可能な歪をおこすことはなかった。さらに、今度はこの一体化物を水中浸漬後、100℃で空中乾燥する操作を10回繰り返したが、電極基材54、55と高分子膜14は全く分離せず、この一体化物の形状も変化しなかった。この試験を従来の電極基材を用いたものでおこなうと、電極基材に開けた穴を起点にヒビがはいり、基材が割れて剥がれ落ちてしまった。また、本発明の電極基材54、55間の電気抵抗を調べたところ、低い抵抗がこの浸漬・乾燥の間でも保持できた。高分子電解質膜14自体は、含水率によって、膨張・収縮するので、この試験により電極☆50

## 14

\*る。水分のある空気中で両極に直流電圧を印加すると、電気化学反応により、カソード側では空気中の水分が電子を失って水素イオンとなり電解質膜中をアノード側に移動する。



※が、空気中の酸素と反応して水になる。



★と酸素ガスになり、酸素ガスは気体として発生し、水素イオンは電解質膜中をアノード側へ移動する。一方、アノードでは水素イオンは電子を得て水素ガスとして発生する。



☆基材高分子膜14と基材54、55間の密着は、非常に強かったことと、金属繊維の強度により、膜の動きを制限できたと考えられる。

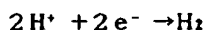
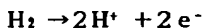
【0069】また、SUS316L自体の電気伝導度はカーボンの電気伝導度の10倍程度もあるので、基材中の電子の移動がスムーズに行われ、電圧ロスを低く保つことができる。また、電解質膜が貫通孔に浸入してきているので、液状で入ってきた水が直接電解質膜に触れることに依って、膜への水の供給が容易になった。尚、金属繊維は今回のものより小さい径のものを用いると単位体積辺りの表面積が増加して、反応面積が増加するが、気体の透過抵抗が増大するので、その際は今回よりも小さな目付けの布を用いることが望ましい。逆に繊維径が大きいものは、大きな目付けのものも使用できる。フレーム等で締め付けることにより、電極基材自身での鋼性がそれほど必要でないときには、焼結を行わないフェルトを使うことも可能である。

【0070】実施例10。以下実施例10について説明する。図7はこの実施例の電気化学デバイス58の断面模式図を示す。59は親水性の繊維でできた層である。ここでは、ポリエステル繊維径1μmの厚さ2mmの不織布を用いた。

【0071】次に動作について説明する。この電気化学デバイス58に水を吹き付けた場合、水は親水層59に広がり面内にはほぼ均一に分布した後、電極12を介して電解質膜14に到達する。一方、反応によって水が電解質膜14と電極12の界面で生ずる場合、過剰な水は親水性層59に吸い取られて、面全体にひろがり、除去される。基材全体では空間が保持されることになり、その中を反応ガスが容易に流通できるので、反応に必要なガスが反応部である電解質膜14と電極界面に供給され続ける。ただし、電子は有機繊維中では移動しないので、電極基材12と外部との電子とのやりとりは、親水層59と電解質膜14の間から端子を取り出すか、あるいは親水層59の一部に穴をあけて端子のみ通すようにする必要があり、大電流を流す運転には不向きである。親水性の繊維としてはその他ポリアミドやポリエチレン等の

合成繊維の他、綿や麻等の天然繊維も考えられるが、層中の孔径を自在に制御できる合成繊維が好ましい。なお、上記実施例では厚さ2mmのものをを用いたが、除湿素子の水を排出する側に適用する場合はさらに厚くしても問題なく、また直接電解質膜14に触れず、室温で運転されるので材料選択の制限は親水性の他にはそれほど考慮する必要は無い。また、親水層の中から、さらに外側に公知の給水高分子を担持させることも可能である。

【0072】実施例11. 以下実施例11について説明する。図8はこの実施例の屈曲した電極と電解質膜を一体化した電気化学デバイス61を示したものであり、62、63が屈曲したガス拡散電極、64が屈曲した電解質膜（固体高分子電解質）である。また、65は電極62によって形成されたガス流路、66は電極63によって形成されたガス流路である。また、68、69は、このガス流路のもう一端を形成する導電性セパレーター板である。また70は絶縁スペーサーフィルムであり、厚さ250μmのテフロンシートを用いた。ガス拡散電極の屈曲に際して特別な技術は特に必要なく、公知の板金プレスの手順で実施することができる。また、電極6



アノード側では水素イオンが電子を得て水素ガスに還元される。電解質膜中は水素イオンしか移動できないので、アノード側では純粋な水素を得ることができる。

【0075】したがって、電子は電極62からセパレーター板68を通り外部回路を経てセパレーター板69、電極63へと流れる。電極基材の厚みは0.3mm程度の厚みであるが、金属繊維は導電性が高いので、もっとも経路の長い流路のてっぺん65Tからセパレーター68までの電子の移動でも電圧のロスがほとんどなく、反応が進行する。また、この時単純平面積あたりの電解質と電極の界面面積が倍になり広いので、反応面積が大きく確保され、大量のガスの精製が可能となった。さらに、電極の厚みを薄く保ったまま、電気化学デバイス自身で流路を構成しているので、単位電池の厚みが非常に薄くなり、電池を積層した積層体が非常にコンパクトに構成できる。セパレーターと電極間の接触抵抗に関しても、金属繊維の弾性を利用して、接触面圧を維持できるので、電圧ロスを低く保つことができる。

【0076】実施例12. 以下実施例12について説明する。図9はこの実施例の弾性のある集電体で挟持させた電気化学デバイス71であり、72が弾性集電体、73が対極の集電体、70が絶縁スペーサーである。弾性集電体72の材質としては、オーステナイト系ステンレスや、マルテンサイト系ステンレスの他、公知のパネ性を有する金属や合金を使用することができるとともに、導電層を塗布したプラスチックフィルムを使用可能であるが、運転条件による耐食性を考慮して選定する必要がある。ここでは室温・空気中で運転させる除湿器に使用※50

\*2、63と電解質膜64との一体化に際しては、例えば特開平3-84866号公報、特開平3-208261号公報、特開平3-208262号公報等に開示されている方法をとれば、屈曲させた電極基材の形状に膜を沿わせることが容易になる。ここでは、SUS316L繊維の焼結の焼結電極基材で、幅2mmのガス流路を形成した。

【0073】次に動作について説明する。この電気化学デバイス61では、電気化学反応の一つである水素ガス精製反応を行なう。不純物に二酸化炭素を含む水素ガスをガス流路65に導入し、セパレーター板68にセパレーター板69に対して0.5Vの電圧をかけると電極62上で後述する式8の反応が生じ、水素ガスのみがプロトンとなって電解質64中を電極63に向かって移動し、後述する式9の反応に依って水素ガスに戻り流路23中に導入される。

【0074】ここでは、カソード側に不純物を含む水素ガスを流し、電圧を印加すると水素ガスだけが反応して水素イオンとなり、電解質膜中をアノード側へ移動する。



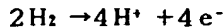
※するために、SUS316Lの厚み0.05mmの板にガス透過用の穴を設けたものを使用した。穴は公知の例えばパンチングや、エッチングまたは機械加工で作成できる。弾性集電体72の大きさは、10cm角のものであり、半径10cmの円弧に加工している。ガス拡散電極は、SUS繊維フェルトに白金メッキを行った実施例6の電極を使用している。組立は、集電体73の上に、電極12、電解質膜14、電極13を重ねてその上から円弧の中心が外側を向くように弾性集電体72のをせ、フレーム74で挟む。フレーム74は厚さ3mmの硬質ポリエチレン製で集電体73にネジ等を用いて固定した。また弾性集電体72には電流を流すための端子を取り付けている（図示せず）。

【0077】次に動作について説明する。大気中で集電体72に集電体73に対して4Vの電圧をかけると、電極12上で上述した式4の反応が生じ、集電体73側の空気中の水分が分解して、プロトンが電解質14中を電極13に向かって移動し、式5の反応に依って空気中の酸素と結合し、水となって出て来る。この時電子は電極12から集電体73を通り外部回路を経て集電体72、電極13へと流れる。集電体72と電極13間の接触抵抗は、集電体72の弾性を利用して、接触面圧を維持できるので、電圧ロスを低く保つことができた。また、一体化していない電極と電解質膜もこの方法では使用できるので、一体化の工程を省略することができた。なお、本実施例では、電極基材自身に触媒機能をもたしたものを使用したが、触媒は電極と一体になっている必要は特に無く、例えば特開平3-46764号公報に示される

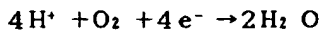
17

ような触媒シートを電極基材と電解質膜の間に挿入してもよい。また、総厚みは0.7mmと非常に薄くてできおり、各種機器に取り付けた場合にもコンパクトに構成することができる。

【0078】実施例13. 以下実施例13について説明する。図10はこの発明の実施例9の電気化学デバイス53(図6)を用いた燃料電池81の概念的な断面図であり、54は貫通孔56のあるカソード、55は同じく貫通孔56のあるアノードであり、68、69はカーボン製のガス流路を有するセパレーター板である。電気化学デバイス81の各電極54、55の有効面積は100\*



カソード54では水素イオンと酸素が結び付き、電子を※



この時、セルの温度はアノードガスの露点(95℃)より低いので、流路66内で、過剰な水分が液滴となって凝縮する。液滴は流路66内をガスの動圧で運ばれながら、電極内の貫通孔56を埋めている電解質膜14に触れ、一部は吸収され、また一部は貫通孔56内の電解質膜14に沿って電解質膜14内部へ流入する。一方カソード54では、余分な水分があるが、貫通孔56を埋めている電解質膜14は電極54より親水性が高いために水は貫通孔56に沿って流路65内に移動し、流通する空気に触れて蒸発する。これにより、電気化学反応に必要な水の供給が可能になるとともに、カソード電極54内の水を速やかに排出できるので反応に必要な酸素の供給が保たれ、電流密度を上げて高い特性を維持することができる。

【0080】実施例14. 以下実施例14について説明する。図11はこの発明の実施例12の電気化学デバイス71を使用した除湿装置91であり、72が弾性種電極、922は直流電源、93は被除湿固体、94は固体93の側壁に開けられた除湿用の窓であり、穴は公知の例えばパンチングや、エッチングまたは機械加工で作成した金属性の板を接合したものでよい。ここでは厚さ0.5mmのSUS304のパンチングメタルを使用した。尚、この窓94は集電板の働きをもたすため、絶縁層が生じないように無塗装としたが、固体93とは絶縁して固定した。また、固体93の外側には除湿素子固定用の枠74を設けている。枠74は固体と同質の鋼板を溶接で固体に取り付けられている。外側は固体と同じ塗装を施したが、内側は集電体72と導通するために無塗装とした。また、集電体72の大きさは、10cm角のものであり、半径10cmの円弧に曲げ加工している。電気化学デバイス71はガス拡散電極に、SUS繊維フェルトに白金メッキを行った実施例6の電極と、ナフィオン117膜を150℃で面圧50kg/cm<sup>2</sup>で一体化したものを使用した。加熱温度を低くしたのは、電極の膜への食い込みを少なくして、電解質膜14の実質厚みを厚く保つことにより、水の逆流を防止するためである。その★50

18

\*cm<sup>2</sup> のものを用いた。また、電解質膜14にはデュボン社のナフィオン115を用いた。

【0079】次に動作について説明する。燃料電池81を外側ヒーター(図示せず)により、80℃に加温し、アノード流路66に95℃で加温した水素ガスを、カソード流路65に50℃に加温した空気を導入した。セパレーター板69-68間を外側回路につなぐと、アノード55上では式10の反応により、水素が電子を放出して水を伴い膜14中をカソード54に向かって移動する。



※得て水が生成する。



★分、一体性が多少劣るが、集電体72により押し付けられるので問題はない。また、電極12は厚み400μmの400g/cm<sup>2</sup>の目付けのフェルト、電極13は厚み200μmの200g/cm<sup>2</sup>の目付けのフェルトを用いている。組立は、枠74に沿って電極13が固体側を向くように電気化学デバイスを挿入し、その上から円弧の中心が固体の外側を向くように集電体72を挿入した。そして、窓94には直流電源の+の端子が接続されており、-の端子は固体93にアース接続した。

【0081】次に動作について説明する。直流電源を起動すると窓94には固体93に対して4Vの電圧がかかる。窓94は電極13と導通しており、固体93は枠74集電体72を介して電極12と導通しているので、電極13には電極12に対して4Vの電圧がかかる。すると、電極13上で式3の反応が生じ、固体93内の空気中の水分が分解して、プロトンが電解質14中を電極12に向かって移動し、式4の反応に依って外気中の酸素と結合し、水となって出て来る。この時電子は電極13から窓94を通り直流電源92を経て固体93、枠74、集電体72、電極12へと流れる。集電体72と電極12間の接触抵抗は、集電体72の弾性を利用して、接触面圧を維持できるので、電圧ロスを低く保つことができる。また、この方式では電気化学デバイスは集電板の弾性で固定されているだけなので、修理の際には電気化学デバイス71部分を抜くだけで簡単に交換できる。固体93の体積が101程度の時、固体93内の相対湿度は大気より40~50%程度低く抑えることができた。また実施例11の電気化学デバイスを用いた場合には、大量のガスの除湿ができるので、エアコンの冷却フィンの風上につければ、フィン内での結露が防止でき、また、酸素富化が可能になる。

【0082】実施例15. 以下、実施例15について説明する。図12は平面内に電子的に独立した複数の電極部を有する実施例7の電気化学デバイス45を用いたガス濃度センサー101の概念的な断面図である。図において、12A、12B、12C、12Dは電子的に独立

した同一平面内の電極である。電極材料には厚み300  $\mu\text{m}$ のカーボンペーパーを用いた。10cm角の電極13の上に、周囲1cmづつはみ出すように12cm角の電解質膜14をのせる。さらに、その上に16個の2cm角の独立電極を電極13が下にある範囲で図13に示すように各電極間が6mmの間隔で並べる。そして実施例1と同様の条件でホットプレスを行った。尚、面圧は独立電極16枚の面積64  $\text{cm}^2$ を基準にした。また、対極13にガスを流すことができるガス流路102と、16の電極に異なったガスを流せる流路103A~103P(図では103A~103Dまで)を設けた。電極13には電圧端子104を集電板(図示せず)を介して接続した。電極12A~12Pにも電圧端子105A~105Pを接続した。尚、端板106、107にはポリカーボネートを用いた。端板106は導電性の金属材料を用いることも可能ではあるが、端板107では電極12A~12Pを電子的に絶縁する必要があるので、もし、金属やカーボンのような導電性材料を使うときは、電極に導電部が触れないようにする必要がある。

【0083】次に動作について説明する。流路102には、純粋な水素を流し、独立した電極の各々には燃料電池スタックの16のセルの燃料排ガスを流した。それぞれの電極12A~12Pと電極13間に生ずる電圧は、それぞれの流路に流れる燃料排ガスの水素分圧に応じて3式で示される電圧になる。それぞれの電圧104-105A間~104-105P間の電圧をモニターすることによって燃料電池スタックの16枚のセルの排ガスの水素濃度を同時に測定することができた。この試験では燃料電池に燃料としてメタン改質模擬ガス(水素80%、残二酸化炭素)を流した。スタック内の各セル電圧は測定によりバラツキがあったが、このバラツキが何に基づくものか分からなかった。しかし、この濃度センサーを設置したところ、セル電圧が低いセルの排ガスを通した電極の端子間電圧が他のセルよりも高く、水素濃度が極端に低くなっていることがわかった。燃料電池スタックでは各セルに流れる電流は同じであるので、消費する水素ガスの量も同じである。にもかかわらず水素濃度が低いのはそのセルに流入する燃料が少ないことを示しており、スタック内でのガスの分配に問題があることがわかり、流路構造とガス流量の最適化をこの電圧をモニターすることにより行うことが可能になり、燃料電池スタックの特性が大幅に向上した。

【0084】尚、本実施例では純水素を流した電極13との電圧を測定して、ガス濃度を測定したが、この場合のように濃度のバラツキのみを測定する場合で有れば、基準電極13の電位を無視して、12A~12Pの電位のバラツキのみをモニターすることによって濃度分布を知ることが可能である。例えば分割電極数を2セルに限定し、もっともガスの配分が偏りやすい両端のセルの排ガスを流路103A、103Bに導入して中央のセルの

排ガスを流路102に導入した場合、流路103A-103B間の電圧が一定値を超える場合には全ガス流量を増加させてスタックの運転を正常に保つといった運転方法を探ることも可能である。

【0085】実施例16。以下実施例16について説明する。図14は実施例8の電気化学デバイス51を使用した電解槽111であり、112は電解槽容器、13はアノード、12Wはカソード、12Rは独立カソード、113アノード集電体、114はカソード集電体、52はシリコン性ゴムキャップ、115は水供給口、116は酸素排出口、117は水素排出口、118は電極12Rへの電流(電圧)端子である。尚、電極には厚さ0.1mm目付け100  $\text{g}/\text{cm}^2$ のステンレス繊維焼結布を用い、電極12W、12Rには白金メッキしたものを、電極13にはイリジウムメッキしたものをを用いた。電解質膜14にはパーフルオロスルホン酸膜としてナフィオン膜を使用した。

【0086】次に動作について説明する。電極12W-13間に直流電圧を印加すると、アノード13上では6式の反応により水が分解して酸素が発生し、一方カソード12Wでは、7式に従い水素ガスが発生する。また、端子118をカソードと短絡すると12Rからも水素が発生し、ゴムキャップ52内は水素で充満し、一部はゴムキャップ52と膜14の隙間から溢れ出ている。電流密度を500  $\text{mA}/\text{cm}^2$ 程度流すと、電極間電圧は2V程度であったが、この電流密度でしばらく運転を続けると、電圧が上昇して電流が流れなくなった。端子118とカソード極を切り離した時の端子とアノードあるいは端子とカソード間の電圧を測定していたところ、電圧が上昇する時に端子118とアノード13との電圧が変化していたが、カソードと端子118間の電圧は殆ど変化しなかった。従って、電解槽111の特性が悪くなったのはアノード電極側に問題があることが推測できたのでアノードに注意して試験をすると、アノード上で発生した酸素の泡で、水の供給がたたれていたことがわかった。そのため、アノードの電極基材を半分の厚みのものに変えたところ、電圧の上昇は起こらなかった。このように、運転中にある一定時間毎に端子118の回路を切り離して電極13との電圧を測定すると、電解槽111に問題があった場合や、特性が悪化し始めた時に、原因を突き止めることができたり、あるいは故障する直前に問題のある箇所を補修できるようになった。

【0087】実施例17。以下実施例17について説明する。図15は実施例11の電気化学デバイス61を用いたガス精製装置121である。電気化学デバイス(一本の曲線で表示)の下側部分がアノード62、上側部分がカソード63である。電極基材は、目付け300  $\text{g}/\text{cm}^2$ 、厚み250  $\mu\text{m}$ のSUS316L繊維の焼結電極基材で、幅2mm、高さ2mmのガス流路を形成した。65は電極62によって形成されたガス流路、66は電極6

## 21

3によって形成されたガス流路である。68、69は、このガス流路のもう一端を形成する導電性端板、122は導電性セパレーター板であり、これにより電気的には直列に4つの精製装置を接続したことになる。4つのデバイスにはそれぞれA～Dの記号を付けた。それぞれのセパレーター板122はSUS304の板で構成しており、電解質膜とのガスシールや屈曲した電極によるガス流路へのマニホールドは、テフロン樹脂を使用した（図示せず）。また、最終的には積層体は、0.2kg/cm<sup>2</sup>の面圧で端板8-9間を押さえつけている。

【0088】次に動作について説明する。不純物に二酸化炭素を含む水素ガスをガス流路65A～65Dに導入し、端板68に端板69に対して2Vの電圧をかけると電極62A～62D上で式8の反応が生じ、水素ガスのみがプロトンとなって電解質14A～14D中を電極63A～63Dに向かって移動し、式9の反応に依って水素ガスに戻り流路66A～66D中に導入される。また、この時単純平面積あたりの電解質と電極の界面面積が倍になったので、平板型の電極を用いた場合のほぼ倍の電流を流すことができた。これは同じ底面積のガス精製装置に対し、倍のガス量を処理できたことになる。さらに、電極の厚みを薄く保ったまま、電気化学デバイス61自体で流路を構成したので、セパレーター板に流路を掘った場合に比べ1枚あたり、厚みが3割小さくなったので、高さが約2/3になった。このため、平板型の同じ大きさのガス精製装置に対する大きさは約1/3になり、著しい小型化が可能になった。また、セパレーターに溝を掘る必要がないので、本実施例のように、市販の薄板を使用することができ、コストが大幅に低減できた。

## 【0089】

【発明の効果】以上のように、請求項1の発明によれば、ガス拡散電極を金属繊維の織布または不織布のいずれかのように構成したので、固体高分子電解質の変形を機械的に防止できる効果がある。

【0090】請求項2の発明によれば、ガス拡散電極を金属繊維と有機繊維の混毛織布または混毛不織布のいずれかのように構成したので、固体高分子電解質の変形を機械的に防止できるとともに、反応に必要な気体を反応部分に容易に流入させ、反応に必要な水を液体の状態ですぐに反応部に補給できる効果がある。

【0091】請求項3の発明によれば、金属繊維を、下記イ～ホのいずれか1種または2種以上のように構成したので、ガス拡散電極の電気抵抗を小さくさせることができ、電圧ロスを低減させる効果がある。

イ. オーステナイト系ステンレススチール

ロ. 周期表5A族元素

ハ. 周期表6A族元素

ニ. 周期表8族元素

ホ. 周期表1B族元素

## 22

【0092】請求項4の発明によれば、金属繊維をフッ素化するように構成したので、ガス拡散電極が機械的に固体高分子電解質の変形を防止し、かつ電気抵抗を小さくさせることができ、また、親水性を付与することにより、反応に必要な気体を反応部分に容易に流入できる効果がある。

【0093】請求項5の発明によれば、有機繊維を親水性繊維のように構成したので、反応に必要な気体を反応部分に容易に流入できる効果がある。

10 【0094】請求項6の発明によれば、有機繊維を親水性繊維のように構成したので、反応に必要な気体を反応部分に容易に流入させることができ、反応に必要な水を液体の状態ですぐに反応部に補給できる効果がある。

【0095】請求項7の発明によれば、ガス拡散電極に触媒粒子を担持するように構成したので、触媒作用により電気化学反応をスムーズに進行させることができ、反応に必要な電圧を低下させる効果がある。

20 【0096】請求項8の発明によれば、触媒粒子を周期表8族元素とするように構成したので、Pt等の触媒作用により電気化学反応をさらにスムーズに進行させることができ、反応に必要な電圧をさらに低下させる効果がある。

【0097】請求項9の発明によれば、金属繊維に、該金属繊維と異なる金属をメッキするように構成したので、該金属により金属繊維の腐食を防止することができ、また、該金属が有する触媒作用により電気化学反応をスムーズに進行させることができ、反応に必要な電圧を低下させる効果がある。

30 【0098】請求項10の発明によれば、前記金属を周期表8族元素、周期表1B族元素から選択された1種以上のように構成したので、該金属により金属繊維の腐食を効果的に防止することができ、また該金属の触媒作用により電気化学反応をさらにスムーズに進行させることができ、反応に必要な電圧をさらに低下させる効果がある。

40 【0099】請求項11の発明によれば、ガス拡散電極の少なくとも一方を、同一平面内に形成され電子的に絶縁された複数の電極部のように構成したので、それぞれの電極部の電圧を変化させることができ、薄い1枚のデバイスで複数の独立した電圧が得られる効果がある。

【0100】請求項12の発明によれば、電極部に該電極部を全体的に覆い、かつ、気密性を有する封止部を設けるように構成したので、この電極部が特定のガスと接触することにより、空間内のガス組成特有の電位を示し、参照電極としての基準となる電位をもつことができる効果がある。

50 【0101】請求項13の発明によれば、ガス拡散電極の少なくとも一方に、複数の貫通孔を形成し、これら貫通孔に前記固体高分子電解質の一部を浸入させるように構成したので、ガス拡散電極と固体高分子電解質との密

## 23

着性を向上させることができ、該固体高分子電解質の変形を防止できる効果がある。

【0102】請求項14の発明によれば、ガス拡散電極の少なくとも一方の表面に、親水性繊維の織布または不織布のいずれかからなる層を形成するように構成したので、ガス拡散電極と固体高分子電解質との界面付近に水滴が滞留するのを防止する効果がある。

【0103】請求項15の発明によれば、ガス拡散電極を屈曲させて前記固体高分子電解質と一体化するように構成したので、単位面積当りの電極面積を拡大させることができ、電気化学反応をスムーズに進行させることができ、また、小さな空間を有効に利用できるので、装置の著しい小型化が可能になる効果がある。

【0104】請求項16の発明によれば、前記ガス拡散電極を、請求項1ないし10のいずれか1項記載のガス拡散電極のように構成したので、機械的に固体高分子電解質の変形を防止することができ、単位面積当りの電極面積を拡大させることができ、電気化学反応をスムーズに進行させる効果がある。

【0105】請求項17の発明によれば、前記固体高分子電解質及びガス拡散電極を、弾性を有する集電体により挟持するように構成したので、固体高分子電解質、ガス拡散電極、集電体それぞれの間の接触抵抗を低下させることができ、電気化学反応に必要な電圧を低下させることができ、製造工程が簡単になる効果がある。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】この発明の実施例1の電気化学デバイスの構成を示す断面図である。

【図2】この発明の実施例3の電気化学デバイスの構成を示す断面図である。

【図3】この発明の実施例5の電気化学デバイスの構成を示す断面図である。

【図4】この発明の実施例7の電気化学デバイスの構成を示す平面図である。

【図5】この発明の実施例8の電気化学デバイスの構成を示す平面図及び断面図である。

【図6】この発明の実施例9の電気化学デバイスの構成を示す断面図である。

【図7】この発明の実施例10の電気化学デバイスの構成を示す断面図である。

【図8】この発明の実施例11の電気化学デバイスの構成を示す断面図である。

## 24

【図9】この発明の実施例12の電気化学デバイスの構成を示す断面図である。

【図10】この発明の実施例9の電気化学デバイスを用いた燃料電池を示す断面図である。

【図11】この発明の実施例12の電気化学デバイスを用いた除湿装置を示す断面図である。

【図12】この発明の実施例7の電気化学デバイスを用いたガス温度センサーを示す断面図である。

【図13】この発明の実施例7の電気化学デバイスを用いたガス濃度センサーの電極の構成を示す平面図である。

【図14】この発明の実施例8の電気化学デバイスを用いた電解槽を示す断面図である。

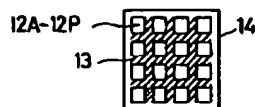
【図15】この発明の実施例11の電気化学デバイスを用いたガス精製装置を示す断面図である。

【図16】従来の電気化学デバイスを示す断面図である。

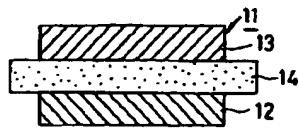
#### 【符号の説明】

- 11 電気化学デバイス
- 12、13 金属繊維電極基材（ガス拡散電極）
- 14 固体高分子電解質膜
- 15 電気化学デバイス
- 16、17 電極基材（ガス拡散電極）
- 21、31 金属繊維
- 22、32 有機繊維
- 41 電気化学デバイス
- 42、43 電極基材（ガス拡散電極）
- 45 電気化学デバイス
- 51 電気化学デバイス
- 52 隔壁（封止部）
- 53 電気化学デバイス
- 54、55 電極基材
- 56 貫通孔
- 58 電気化学デバイス
- 59 親水性の繊維でできた層
- 61 電気化学デバイス
- 62、63 ガス拡散電極
- 64 電解質膜（固体高分子電解質）
- 71 電気化学デバイス
- 72 弾性集電体
- 73 集電体

【図13】



【図1】

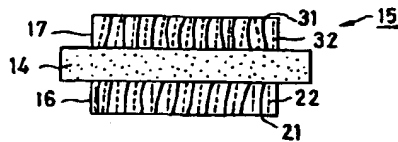


11:電気化学デバイス

12,13:金属繊維電極基材(ガス拡散電極)

14:固体高分子電解質膜

【図2】



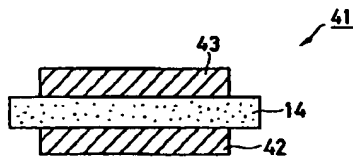
15:電気化学デバイス

16,17:電極基材(ガス拡散電極)

21,31:金属繊維

22,32:有機繊維

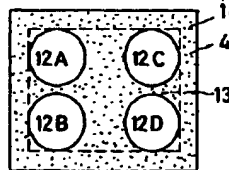
【図3】



41:電気化学デバイス

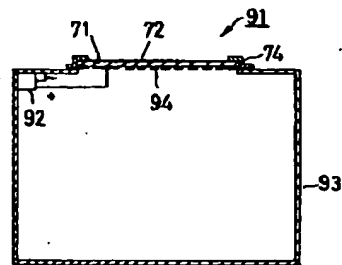
42,43:電極基材(ガス拡散電極)

【図4】

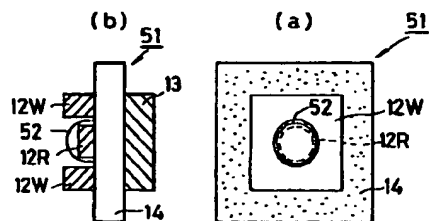


45:電気化学デバイス

【図11】



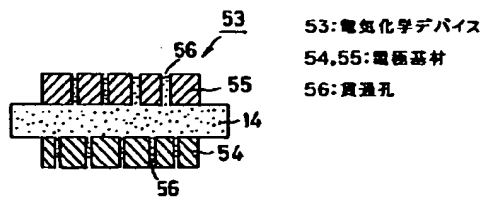
【図5】



51:電気化学デバイス

52:隔壁(封止部)

【図6】

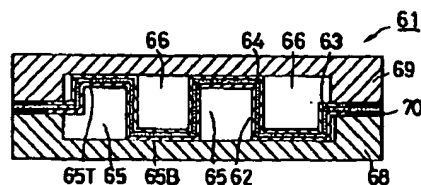


53:電気化学デバイス

54,55:電極基材

56:貫通孔

【図8】

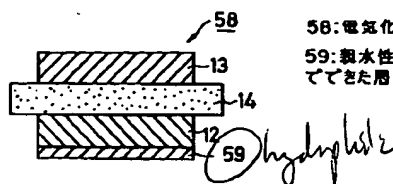


61:電気化学デバイス

62,63:ガス拡散電極

64:電解質膜(固体高分子電解質)

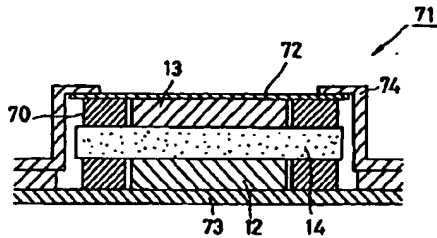
【図7】



58:電気化学デバイス

59:親水性の繊維でできた層

【図9】

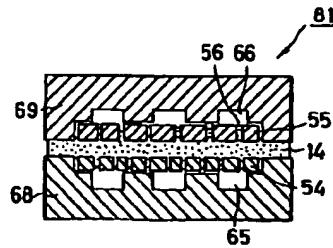


71:電気化学デバイス

72:弾性導電体

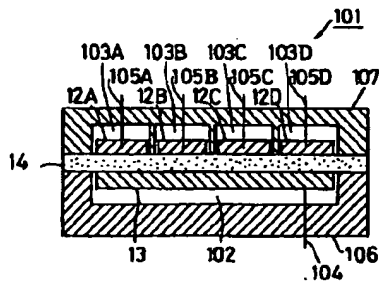
73:電極体

【図10】

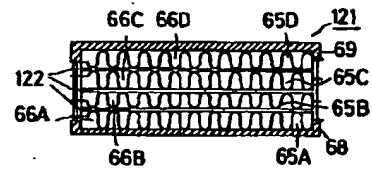
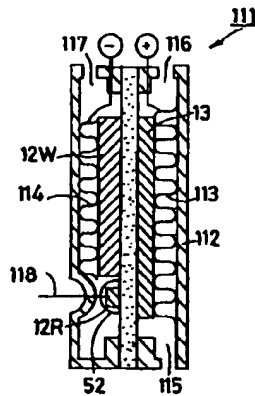


【図15】

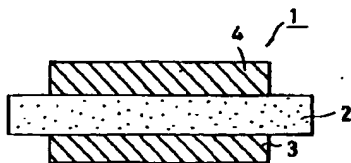
【図12】



【図14】



【図16】



## 【手続補正書】

【提出日】平成5年7月20日

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項3

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項3】 前記金属繊維は下記イ～へのいずれか1種または2種以上であることを特徴とする請求項1または2のいずれか1項記載の電気化学デバイス。イ. オー

ステナイト系ステンレススチール

ロ. 周期表5A族元素

ハ. 周期表6A族元素

ニ. 周期表8族元素

ホ. 周期表1B族元素

ヘ. 周期表4A族元素

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0009



## 【補正方法】変更

## 【補正内容】

【0009】請求項3の発明に係る電気化学デバイスは、前記金属繊維を下記イ～へのいずれか1種または2種以上としたものである。

イ、オーステナイト系ステンレススチール

ロ、周期表5A族元素

ハ、周期表6A族元素

ニ、周期表8族元素

ホ、周期表1B族元素

ヘ、周期表4A族元素

## 【手続補正3】

## 【補正対象書類名】明細書

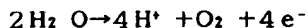
## 【補正対象項目名】0026

## 【補正方法】変更

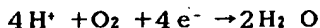
## 【補正内容】

【0026】請求項3の発明における電気化学デバイスは、金属繊維を下記イ～へのいずれか1種または2種以上としたことにより、ガス拡散電極の電気抵抗を小さくさせ、電圧ロスを低減する。

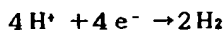
イ、オーステナイト系ステンレススチール



水素イオンはカソード上で電子を得て水素に還元される



結局、アノード側の水はカソード側に移動することになり、アノード側に空間の湿度を下げることになる。また、例えば水中で両極に直流電圧を印加すると電気化学反応により、アノードでは水は電子を失って水素イオン



## 【手続補正5】

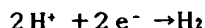
## 【補正対象書類名】明細書

## 【補正対象項目名】0072

## 【補正方法】変更

## 【補正内容】

【0072】実施例11. 以下実施例11について説明する。図8はこの実施例の屈曲した電極と電解質膜を一体化した電気化学デバイス61を示したものであり、62、63が屈曲したガス拡散電極、64が屈曲した電解質膜（固体高分子電解質）である。また、65は電極62によって形成されたガス流路、66は電極63によって形成されたガス流路である。また、68、69は、このガス流路のもう一端を形成する導電性セパレーター板である。また70は絶縁スペーサーフィルムであり、厚さ250μmのテフロンシートを用いた。ガス拡散電極の屈曲に際して特別な技術は特に必要なく、公知の板金



カソード側では水素イオンが電子を得て水素ガスに還元される。電解質膜中は水素イオンしか移動できないの

ロ、周期表5A族元素、すなわち V、Nb、Taの3種

ハ、周期表6A族元素、すなわち Cr、Mo、Wの3種

ニ、周期表8族元素、すなわち Fe、Co、Ni、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Ptの9種

ホ、周期表1B族元素、すなわち Cu、Ag、Auの3種

ヘ、周期表4A族元素、すなわち Ti、Zr、Hfの3種

## 【手続補正4】

## 【補正対象書類名】明細書

## 【補正対象項目名】0065

## 【補正方法】変更

## 【補正内容】

【0065】ここで水素イオンの移動について説明する。水分のある空気中で両極に直流電圧を印加すると、電気化学反応により、アノード側では空気中の水分が電子を失って水素イオンとなり電解質膜中をカソード側へ移動する。

..... (4)

が、空気中の酸素と反応して水になる。

..... (5)

と酸素ガスになり、酸素ガスは気体として発生し、水素イオンは電解質膜中をカソード側へ移動する。一方、カソードでは水素イオンは電子を得て水素ガスとして発生する。

..... (6)

..... (7)

プレスの際で実施することができる。また、電極62、63と電解質膜64との一体化に際しては、例えば特開平3-84866号公報、特開平3-208261号公報、特開平3-208262号公報等に開示されている方法をとれば、屈曲させた電極基材の形状に膜を沿わせることが容易になる。ここでは、SUS316L繊維の焼結電極基材で、幅2mmのガス流路を形成した。

## 【手続補正6】

## 【補正対象書類名】明細書

## 【補正対象項目名】0074

## 【補正方法】変更

## 【補正内容】

【0074】ここでは、アノード側に不純物を含む水素ガスを流し、電圧を印加すると水素ガスだけが反応して水素イオンとなり、電解質膜中をカソード側へ移動する。

..... (8)

..... (9)

で、カソード側では純粋な水素を得ることができる。

## 【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0081

【補正方法】変更

【補正内容】

【0081】次に動作について説明する。直流電源を起動すると窓94には匡体93に対して4Vの電圧がかかる。窓94は電極13と導通しており、匡体93は枠74集電体72を介して電極12と導通しているので、電極13には電極12に対して4Vの電圧がかかる。すると、電極13上で式3の反応が生じ、匡体93内の空気中の水分が分解して、プロトンが電解質14中を電極12に向かって移動し、式4の反応に依って外気中の酸素と結合し、水となって出て来る。この時電子は電極13から窓94を通り直流電源92を経て匡体93、枠74、集電体72、電極12へと流れる。集電体72と電極12間の接触抵抗は、集電体72の弾性を利用して、接触面圧を維持できるので、電圧ロスを低く保つことができる。また、この方式では電気化学デバイスは集電板の弾性で固定されているだけなので、修理の際には電気化学デバイス71部分を抜くだけで簡単に交換できる。匡体93の体積が10リットル時、匡体93内の相対湿度は大気より40～50%程度低く抑えることができた。また実施例11の電気化学デバイスを用いた場合には、大量のガスの除湿ができるので、エアコンの冷却フィンの風上につければ、フィン内での結露が防止でき、また、酸素富化が可能になる。

【手続補正8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0091

【補正方法】変更

【補正内容】

【0091】請求項3の発明によれば、金属繊維を、下記イ～へのいずれか1種または2種以上のように構成したので、ガス拡散電極の電気抵抗を小さくさせることができ、電圧ロスを低減させる効果がある。

イ. オーステナイト系ステンレススチール

ロ. 周期表5A族元素

ハ. 周期表6A族元素

ニ. 周期表8族元素

ホ. 周期表1B族元素

ヘ. 周期表4A族元素

【手続補正9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0098

【補正方法】変更

【補正内容】

【0098】請求項10の発明によれば、前記金属を周期表8族元素、周期表1B族元素から選択された1種以上により構成したので、該金属により金属繊維の腐食を効果的に防止することができ、また該金属の触媒作用により電気化学反応をさらにスムーズに進行させることができ、反応に必要な電圧をさらに低下させる効果がある。

## \* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## DETAILED DESCRIPTION

## [Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] This invention relates to the electrochemistry device excellent in a mechanical strength and chemical stability, is used for the fuel cell especially generated using an electrochemical reaction, the refiner which refines gas, the gas sensor which detects gas, and relates to a suitable electrochemistry device.

[0002]

[Description of the Prior Art] An electrochemistry device is a device to which the fundamental reaction for generating electricity or refining gas using an electrochemical reaction is performed, and is widely applied to the fuel cell, the gas purifier, the gas sensor, etc. For example, a fuel cell supplies an oxidizer for fuel to another side at one side of an electrode in contact with both sides of an electrolyte object, and although chemical energy is transformed into direct electrical energy by making oxidization of fuel react electrochemically within a cell, when it raises an example with a solid-state macromolecule type fuel cell, it will point out the solid-state poly membrane, the gas diffusion electrode, or its unification object as an electrolyte object.

[0003] Drawing 16 is the cross section of the electrochemistry device 1 which constitutes the typical solid-state polyelectrolyte type fuel cell of proton conductivity. In drawing, in 2, a solid-state polyelectrolyte film (it is hereafter called an electrolyte film for short) and 3 show an anode electrode, and 4 shows a cathode electrode. That with which the perfluoro sulfonic-acid film, the anode electrode 3, and the cathode electrode 4 are supporting the platinum catalyst to the carbon fiber in the electrolyte film 2 is used. Next, operation is explained. If hydrogen gas is supplied to the anode electrode 3, oxygen is supplied to the cathode electrode 4 and current is taken out from the anode electrode 3 and the cathode electrode 4 through an external circuit, the following reactions will occur.

Anode reaction  $H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$  ..... (1)

Cathode reaction  $2H^+ + 2e^- + 1/2O_2 \rightarrow H_2O$  ..... (2)

At this time, hydrogen serves as a proton on the anode electrode 3, and it moves to the cathode electrode 4 with water in the inside of the electrolyte film 2, it reacts with oxygen on the cathode electrode 4, and water is produced. Therefore, when having produced this reaction, within the pore of an electrode, the water of gas and a liquid goes in and out, and the electron is flowing in the base material of an electrode. Therefore, in order to perform such a reaction smoothly, it is required to make it make it not check movement of the reaction active material generated or consumed by the reaction and not check an electron transfer. When water exists with a liquid about movement of the aforementioned active material, circulation of reactant gas may be prevented by the drop and especially movement of water is important.

[0004] Therefore, considering water as a method of promoting movement by mechanical force, such as a pressure and passage structure, JP,1-309263,A, JP,2-86071,A, JP,2-260371,A, JP,3-102774,A, etc. are already proposed. Moreover, as a means to promote movement by the difference in compatibility with water using a drying agent or a hydrophilic material, JP,1-140562,A, JP,3-149762,A, JP,3-182052,A, etc. are proposed. When a conductive material will be used for an electrode as an electron transfer, therefore it manufactures an electrode, for example, as shown in JP,3-25856,A, JP,2-152166,A etc. is proposed as a method which there is a method which kneads and binds carbon powder, a conductive water-repellent material, and a conductive reinforcing agent, and binds a metal. Moreover, there is also the method of supporting a weak electrode material with the rigid structure, for example, JP,3-149762,A is proposed. Moreover, there are various uses in an electrochemistry device, and although described at each above-mentioned patent, otherwise, the gas purifier of JP,62-59184,B, the dehumidification element of JP,61-216714,A, etc. are proposed.

[0005]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Since the electrochemistry device currently used for the conventional fuel cell etc. was constituted as mentioned above, as mentioned above, the electrode was mechanically weak as the structure, and when it was made to deform, it had troubles, like there is a possibility of causing a crack or causing lack.

[0006] It aims at obtaining the electrochemistry device which can be mass-produced, this invention having been made in order to cancel the above troubles, and it being excellent in an electrical property, and maintaining a mechanical strength and chemical stability.

[0007]

[Means for Solving the Problem] The electrochemistry device concerning invention of a claim 1 prepares a gas diffusion electrode in the double-sided section of a solid-state polyelectrolyte, and makes this gas diffusion electrode either the textile fabrics of a metal fiber, or a nonwoven fabric.

[0008] The electrochemistry device concerning invention of a claim 2 prepares a gas diffusion electrode in the double-sided section of a solid-state polyelectrolyte, and makes this gas diffusion electrode either \*\*\*\*\* of a metal fiber and organic fiber, or a \*\*\*\* nonwoven fabric.

[0009] The electrochemistry device concerning invention of a claim 3 makes the aforementioned metal fiber any one sort of following I - HO, or two sorts or more.

I. austenite stainless steel SUCHIRURO, periodic-table 5A group element HA, periodic-table 6A group element NI, periodic-table 8 group element HO, periodic-table 1B group element [0010] The electrochemistry device concerning invention of a claim 4 fluorine-izes the aforementioned metal fiber.

[0011] The electrochemistry device concerning invention of a claim 5 makes the aforementioned organic fiber water-repellent fiber.

- [0012] The electrochemistry device concerning invention of a claim 6 makes the aforementioned organic fiber hydrophilic fiber.
- [0013] The electrochemistry device concerning invention of a claim 7 supports a catalyst particle to the aforementioned gas diffusion electrode.
- [0014] The electrochemistry device concerning invention of a claim 8 uses the aforementioned catalyst particle as a periodic-table 8 group element.
- [0015] The electrochemistry device concerning invention of a claim 9 plates a metal which is different from this metal fiber in the aforementioned metal fiber.
- [0016] The electrochemistry device concerning invention of a claim 10 makes the aforementioned metal one or more sorts chosen from the periodic-table 8 group element and the periodic-table 1B group element.
- [0017] The electrochemistry device concerning invention of a claim 11 prepares a gas diffusion electrode in the double-sided section of a solid-state polyelectrolyte, and makes at least one side of this gas diffusion electrode two or more electrode sections which were formed in the same flat surface and insulated electronically.
- [0018] The electrochemistry device concerning invention of a claim 12 prepares the closure section which covers this electrode section on the whole, and has airtightness in at least one up position of the aforementioned electrode section.
- [0019] The electrochemistry device concerning invention of a claim 13 prepares a gas diffusion electrode in the double-sided section of a solid-state polyelectrolyte, forms two or more breakthroughs at least in one side of this gas diffusion electrode, and makes a part of aforementioned solid-state polyelectrolyte infiltrate into it at these breakthroughs.
- [0020] The electrochemistry device concerning invention of a claim 14 prepares a gas diffusion electrode in the double-sided section of a fixed polyelectrolyte, and forms in one [ at least ] front face of this gas diffusion electrode the layer which consists of either textile fabrics of hydrophilic fiber, or a nonwoven fabric.
- [0021] The electrochemistry device concerning invention of a claim 15 prepares a gas diffusion electrode in the double-sided section of a solid-state polyelectrolyte, makes this gas diffusion electrode crooked, and unites with the aforementioned solid-state polyelectrolyte.
- [0022] The electrochemistry device concerning invention of a claim 16 makes the aforementioned gas diffusion electrode the gas diffusion electrode of ten a claim 1 or given in any 1 term.
- [0023] The electrochemistry device concerning invention of a claim 17 prepares a gas diffusion electrode in the double-sided section of a solid-state polyelectrolyte, and pinches the aforementioned solid-state polyelectrolyte and a gas diffusion electrode with the charge collector which has elasticity.
- [0024] [Function] By the gas diffusion electrode which the electrochemistry device in invention of a claim 1 made either the textile fabrics of a metal fiber, or the nonwoven fabric, even if a solid-state polyelectrolyte tends to deform by change of temperature or moisture content, the aforementioned gas diffusion electrode prevents deformation of this solid-state polyelectrolyte mechanically.
- [0025] The electrochemistry device in invention of a claim 2 By the gas diffusion electrode made into either \*\*\*\*\* of a metal fiber and organic fiber, or the \*\*\*\* nonwoven fabric, while preventing deformation of a solid-state polyelectrolyte mechanically The water produced on the electrode focuses and gathers for one fiber by two or more sorts of fiber from which a hydrophilic property differs, the space along which a gas passes can be generated for the fiber of another side, a gas required for a reaction can flow into it easily at an active zone, and water required for a reaction can be easily supplied to the reaction section in the state of a liquid.
- [0026] By having made the metal fiber into any one sort of following I - HO, or two sorts or more, the electrochemistry device in invention of a claim 3 makes the electric resistance of a gas diffusion electrode small, and reduces a voltage loss.  
an I . austenite stainless steel SUCHIRURO . periodic-table 5A group element -- namely, -- the three-sort HA . periodic-table 6A group element of V, Nb, and Ta -- namely, -- the three-sort NI . periodic-table 8 group element of Cr, Mo, and W -- namely, -- the nine-sort HO . periodic-table 1B group element of Fe, Co, nickel, Ru, Rh, Pd, Os, Ir, and Pt -- namely, -- Three sorts [ Since the electrochemistry device in invention of a claim 4 gives water repellence by fluorine-ization while a gas diffusion electrode prevents deformation of a solid-state polyelectrolyte mechanically and it makes electric resistance small by having fluorine-ized the metal fiber, by electrochemical reaction, the water produced on the electrode becomes spherical, and moves in the inside of the space of an electrode substrate, and it becomes easy [ that a gas required for a reaction flows into an active zone ] .
- [0028] By having made organic fiber into water-repellent fiber, by electrochemical reaction, the water produced on the electrode becomes spherical, and moves in the inside of the space of an electrode substrate, and the electrochemistry device in invention of a claim 5 becomes easy [ that a gas required for a reaction flows into an active zone ] .
- [0029] The electrochemistry device in invention of a claim 6 While a gas diffusion electrode prevents deformation of a solid-state polyelectrolyte mechanically and making electric resistance small by having made organic fiber into hydrophilic fiber Since there is hydrophilic fiber, the water produced on the electrode focuses and gathers for hydrophilic fiber, the space along which a gas passes is generated in a metal fiber, a gas required for a reaction flows into it easily at an active zone, and water required for a reaction is easily supplied to the reaction section in the state of a liquid.
- [0030] When the electrochemistry device in invention of a claim 7 supported the catalyst particle to the gas diffusion electrode, electrochemical reaction advances smoothly by the catalysis and voltage required for a reaction falls.
- [0031] When the electrochemistry device in invention of a claim 8 used the catalyst particle as the periodic-table 8 group element, electrochemical reaction advances still more smoothly by catalyses, such as Pt, and voltage required for a reaction falls further.
- [0032] When the electrochemistry device in invention of a claim 9 plated a metal which is different from this metal fiber in a metal fiber, electrochemical reaction advances smoothly by the catalysis which the metal which covered fiber prevents corrosion and this metal has, and voltage required for a reaction falls.
- [0033] When the electrochemistry device in invention of a claim 10 made the aforementioned metal one or more sorts chosen from the periodic-table 8 group element and the periodic-table 1B group element, this metal prevents the corrosion of a metal fiber effectively, and electrochemical reaction advances still more smoothly by the catalysis, and voltage required for a reaction falls further.
- [0034] When the electrochemistry device in invention of a claim 11 made at least one side of a gas diffusion electrode two or more electrode sections which were formed in the same flat surface and insulated electronically, the voltage of each electrode section changes.
- [0035] The electrochemistry device in invention of a claim 12 shows potential with this electrode section peculiar to the gas composition in space currently closed by having prepared the closure section which covers this electrode section on the whole in the electrode section, and has airtightness in it.

[0036] By having made a part of solid-state polyelectrolyte infiltrate into two or more breakthroughs formed at least in one side of a gas diffusion electrode, the adhesion of the electrochemistry device in invention of a claim 13 of a gas diffusion electrode and a solid-state polyelectrolyte improves, and it prevents deformation of this solid-state polyelectrolyte.

[0037] By having prepared the layer which consists of the textile fabrics or the nonwoven fabric of hydrophilic fiber on the surface of a gas diffusion electrode, hydrophilic fiber sucks up the moisture on an electrode and the electrochemistry device in invention of a claim 14 prevents that waterdrop piles up near the interface of the aforementioned gas diffusion electrode and a solid-state polyelectrolyte.

[0038] By the electrochemistry device in invention of a claim 15 having made the gas diffusion electrode crooked, and having united with the solid-state polyelectrolyte, the electrode area per unit area is expanded and electrochemical reaction advances smoothly.

[0039] While the electrochemistry device in invention of a claim 16 prevents deformation of a solid-state polyelectrolyte mechanically by having used the gas diffusion electrode of a claim 1-10 given in any 1 term, the electrode area per unit area is expanded and electrochemical reaction advances smoothly.

[0040] When the electrochemistry device in invention of a claim 17 pinched the solid-state polyelectrolyte and the gas diffusion electrode with the charge collector which has elasticity, a gas diffusion electrode is forced on a solid-state polyelectrolyte by the fixed pressure, the contact resistance between this solid-state polyelectrolyte, a gas diffusion electrode, and each charge collector falls, and voltage required for electrochemical reaction falls.

[0041]

[Example]

One example of this invention is explained about drawing below example 1. Drawing 1 is the notional cross section of the electrochemistry device 11 of this invention, and, as for 12 and 13, a metal-fiber electrode substrate (gas diffusion electrode) and 14 are solid-state polyelectrolyte films in drawing. It is superintendent officer 400 g/cm<sup>2</sup> sintered after applying a single fiber with a diameter [ of SUS316L / of 12 micrometers ], and a length of 50-100mm to open fiber as a metal fiber. Cloth was used. When Nafion 117 of Du Pont which is the commercial elegance of a perfluoro sulfonic-acid film is used for the solid-state polyelectrolyte film 14, they are electrode substrates 12 and 13 and a poly membrane 14 at 190 degrees C 50 kg/cm<sup>2</sup> When a hotpress was performed and it unified by planar pressure, no less than 50 micrometers of fiber of electrode substrates 12 and 13 were eating into the poly membrane 14.

[0042] Next, operation is explained. When it manufactured as a unification object of the size of 10cm angle, even if this electrochemistry device 11 had only an end by hand by the \*\*\*\* of an electrode substrate and dealt with it, it did not cause distortion which cannot leave or cannot be reproduced. Furthermore, although the operation which carries out air dryness of this electrochemistry device 11 at 100 degrees C after being underwater immersed was repeated 3 times, electrode substrates 12 and 13 and the poly membrane 14 were not separated at all, and a configuration did not change, either. If it is a thing using the conventional electrode substrate and this examination is performed, cracking would go into the electrode substrate, and the base material will have separated and fallen. Moreover, when the electrode substrate 12 of this invention and the electric resistance between 13 were investigated, low resistance has held also between this being immersed and dryness. Since polyelectrolyte film 14 the very thing is expanded and contracted by the water content, it is thought by this examination that the adhesion between a poly membrane 14, a base material 12, and 13 was very strong, and has prevented deformation of a poly membrane 14 with the intensity of a metal fiber. Moreover, since there is electric conductivity of the SUS316L itself about 10 times of the electric conductivity of carbon, the electron transfer in a base material is performed smoothly, and can keep a voltage loss low. In addition, since gaseous transparency resistance will increase although the surface area of the unit-volume neighborhood increases and reaction area increases if a metal fiber uses the thing of a path smaller than this thing, it is desirable to use the cloth of the superintendent officer smaller than this time in that case. Conversely, what has a large diameter of fiber can also use a big superintendent officer's thing. Moreover, by binding tight with a frame etc., when the \*\*\*\* of the electrode substrate itself is not so required, it is also possible to use the felt which does not sinter.

[0043] The example 2 of this invention is explained below example 2. This electrochemistry device carries out the fluoridation of the metal fiber which constitutes the electrode substrates 12 and 13 of the electrochemistry device 11 of an example 1, and is the same as that of the electrochemistry device 11 of an example 1 about a configuration and mechanical operation. The fluoridation of a metal-fiber cloth was performed by placing fiber into a fluorine or hydrogen fluoride gas. Since reaction area of a metal fiber is large unlike a board, as for the concentration of a fluorine or hydrogen fluoride gas, it is desirable to introduce gradually the reactant gas below the number of mols of the monoatomic layer on \*\*\*\*\* and the front face of a metal fiber which stopped to several% or less, or was subtracted to the vacuum, and the number of the said mols, and to perform it.

[0044] Next, operation is explained. When water is sprayed on the electrochemistry device 11 of this example, water becomes spherical and rolls electrode substrate 12 and 13 top. Therefore, since water does not enter in an electrode substrate 12 and 13 even if water adheres to the equipment which used this electrochemistry device 11, the space along which gas passes is secured and reactant gas and detected gas are continuously supplied to the reaction section. When water arises by the reaction, moreover, electrode substrates 12 and 13 Since it has the property which flips water by the fluoridation, the water produced by the reaction Since it becomes spherical, it will move in electrode substrate 12 and 13 top, much space will be held in an electrode substrate 12 and 13 and reactant gas can circulate the inside of it easily Since gas required for a reaction continues being supplied to the interface of the electrolyte film 14 and electrode substrates 12 and 13 which are the reaction sections, a reaction is performed favorably.

[0045] The example 3 of this invention is explained below example 3. In 16 and 17, an electrode substrate (gas diffusion electrode), and 21 and 31 show 22, and an electrode substrate 16, the metal fiber in 17, and 32 show [ in / drawing / drawing 2 is the cross section of the electrochemistry device 15 of this example, and ] an electrode substrate 16 and the organic fiber in 17. As organic fiber 22 and 32, it \*\*\*\* (ed) at 10% or less by the weight ratio using water-repellent fluorine system fiber.

[0046] Next, operation is explained. When water is sprayed on the electrochemistry device 15 in this example, since there is water-repellent fluorine system fiber, water becomes spherical and rolls electrode substrate 16 and 17 top. Therefore, since water does not enter in an electrode substrate 16 and 17 even if water adheres to the equipment which used this electrochemistry device 15, the space along which gas passes is secured and reactant gas and detected gas are continuously supplied to the reaction section. When water arises by the reaction, moreover, fluorine system fiber Since it has the property which flips water, the water produced by the reaction Since a part becomes spherical about a fluorine system fiber top, and moves in electrode substrate 16 and 17 top and a part can be drawn near on a metal fiber In an electrode substrate 16 and the 17 whole, since space will be held and reactant gas can circulate the inside of it easily, gas required for a reaction continues being supplied to the electrolyte film 14 and electrode interface which are the reaction section.

[0047] In addition, since an electron does not move as for the inside of organic fiber, it is not desirable to make [ many ] the amount of

organic fiber more than this. For example, since the specific gravity of fluorine system fiber is about 2.1 and the specific gravity of a metal fiber is 8.0 on the other hand even if it is 10% of case in a weight ratio, in a volume ratio, it may become no less than 30%, and an insulating layer may be formed according to how to involve fiber. In this case, the electron transfer in an electrode substrate is barred and a property falls.

[0048] Next, the deformation example of the above-mentioned electrochemistry device 15 is explained. Here, it \*\*\*\*(ed) at 3% or less by the weight ratio, using the aramid fiber of a hydrophilic property as organic fiber 22 and 32.

[0049] Next, operation is explained. When water is sprayed on the electrochemistry device 15 in this invention, water is absorbed by the aramid fiber of a hydrophilic property and moves toward the electrolyte film 14 in the inside of an electrode substrate 16 and 17. Therefore, water can be supplied to the reaction section, securing the space along which gas passes, if the water of a liquid is supplied to this electrochemistry device. Moreover, since water can draw near to the direction of organic fiber when water arises by the reaction, electronic delivery, the metal fiber which electrochemical reaction produces, and the water which bars circulation of gas near the electrolyte interface are removed, and the electrolyte film 14 and electrode interface whose gas required for a reaction is the reaction section continue being supplied.

[0050] Moreover, since an electron does not move here as for the inside of organic fiber, it is not desirable to make [ many ] the amount of organic fiber more than this. For example, specific gravity of an aramid fiber is as small as 1.5, and since it is covered with moisture and real volume becomes large, it is necessary to make a content small as much as possible. Moreover, although it is also possible to use natural fibers other than synthetic fibers, such as polyester and an acrylic, such as cotton and hemp, if it considers as the organic fiber of a hydrophilic property in addition, what produces decomposition by the functional group of the electrolyte film 14 is unsuitable.

[0051] The example 4 of this invention is explained below example 4. This electrochemistry device carries out the fluoridation of the metal fibers 21 and 31 of the electrochemistry device 15 of an example 3, and is the same as that of a configuration and the electrochemistry device 15 which used the hydrophilic fiber of an example 3 about mechanical operation. Moreover, the fluoridation of a metal fiber is the same as that of the fluoridation of the cloth of an example 2.

[0052] Next, operation is explained. Since water has a water-repellent metal fiber and electrode substrate 16 and 17 top is rolled, when water is sprayed on the electrochemistry device 15 in this example, even if water adheres to the equipment which used this electrochemistry device 15, the space along which gas passes is secured without water entering in an electrode substrate 16 and 17, and reactant gas and detected gas are continuously supplied to the reaction section. On the other hand, since water can draw near to the direction of organic fiber when water arises by the reaction, electronic delivery, the metal fiber which electrochemical reaction produces, and the water which bars circulation of gas near the electrolyte interface are removed, and the electrolyte film 14 whose gas required for a reaction is the reaction section, an electrode substrate 16, and 17 interfaces continue being supplied. Moreover, since an electron does not move here as for the inside of organic fiber, it is not desirable to make [ more / than required ] the amount of organic fiber.

[0053] The example 5 of this invention is explained below example 5. Drawing 3 is the cross section of the electrochemistry device 41 of this example, and 42 and 43 are the electrode substrate 12 of an example 1, and the electrode substrate (gas diffusion electrode) which supported the catalyst particle to 13 each in drawing. Platinum black (platinum particle) was used as a catalyst particle. Platinum is the liquid which made platinum black suspend 30% in a weight ratio to the lower-alcohol solution which contains a polyelectrolyte 5% although it is in the method of support variously 1cm to an electrode substrate 2 It applied so that it might become 4mg of hits, and it was made to dry. And electrode substrates 42 and 43 and the electrolyte film 14 were made to unify with the hotpress of example 1 publication.

[0054] Next, operation is explained. Hydrogen is passed to one electrode substrate 42 of the electrochemistry device 41 of this example. Although current flowed for the first time and hydrogen was detected from the electrode substrate 13 side by the electrochemistry device 11 of an example 1 when 100mV or more of potentials between two poles was applied when an electronegative potential was applied to another electrode substrate 43 to an electrode substrate 42 In this example, current flowed by 10mV or more, and it has checked that hydrogen occurred from an electrode substrate 43 side. It has checked that the platinum currently supported by electrode substrates 42 and 43 served as a catalyst by this, and electrochemical reaction was promoted. In addition, if the so-called platinum support carbon catalyst which made the carbon particle support platinum is applied by this method since specific gravity is small even when the same platinum is made into a catalyst about a catalyst, the amount of catalysts in the liquid to apply will become about 30 percent at the time of platinum black, and the amount of platinum at the time of using the catalyst of support 20% will decrease to about 5% compared with the time of platinum black. Therefore, although the amount of platinum can be saved sharply, the catalyst effect decreases somewhat. if it has as a catalyst not only platinum but platinum group elements, and the alloy containing them or the catalyst effect generally marketed, even if it will use the catalyst particle of other kinds -- putting -- serving -- although there is nothing, when taking the method of supporting the base material by application, it is necessary to adjust liquid

[0055] example 6. -- this electrochemistry device plates the electrode substrate 12 of an example 1, and the platinum which has the catalyst effect in 13 each Degreasing washing is carried out in order to perform platinum plating, and to remove the impurity of the front face of electrode substrates 12 and 13 first. In this state, since electrode substrates 12 and 13 may crawl plating liquid, electrode substrates 12 and 13 are boiled for several minutes in a purified water, or it is immersed for several seconds into 1-N hydrochloric acid. Then, it moves like a galvanizer. Although plating liquid used the acid type thing of the phosphoric acid system generally marketed on the standard condition, there is especially no problem also at well-known liquid composition. However, in order to plate on cloth, unlike the thing of a tabular, there were the following phenomena. Since the hydrogen foam generated in the case of plating stops into fiber, bars contact of a fiber front face and plating liquid and checks advance of plating, it needs to give vibration to the fiber in plating liquid. Moreover, since electrode substrates 12 and 13 were flexible, there is a possibility that buoyancy may work and come floating to the portion which the foam attached, and the fixture which fixes four sides or ends of a base material, and can pass current was needed (not shown). The amount of plating was adjusted to the amount which becomes the plating thickness of 1 micrometer, when it considered that an electrode substrate is monotonous. Although [ than this ] more [ , of course ], this amount was enough if the catalyst effect was considered. Moreover, with equipment which is operated with two or less 0.1 A/cm low current density by the use, you may decrease the amount of plating extremely. Moreover, what is necessary is just to use the well-known plating technology according to the composition, even when using other elements or alloys as a catalyst.

[0056] Next, operation is explained. About the catalyst effect, since it is the same as that of the electrochemistry device 41 of an example 5, it omits. Peeling of plating was not produced even if it repeated the process of being under a boiling water for 5 hours, and drying the electrode substrate of this example. Even if a flow of a reacting matter uses this on intense conditions like a fuel cell or a cell, it shows that there is no defluxion of a catalyst and the stable property can be maintained.

[0057] The example 7 of this invention is explained below example 7. Drawing 4 is the plan of the electrochemistry device 45 which has two or more polar zone which became independent electronically in the flat surface. In drawing, 12A, 12B, 12C, and 12D are the electrodes in the same flat surface which became independent electronically. The carbon paper with a thickness of 300 micrometers was used for the electrode material. On the electrode 13 of 10cm angle, the electrolyte film 14 of 12cm angle is carried. Furthermore, the Teflon sheet 46 with a thickness of 250 micrometers which made on it the independent electrodes 12A-12D of four 4cm diameters and the hole where four independent electrodes 12A-12D go inside is arranged in a coplanar. And the hotpress was performed on the same conditions as an example 1. In addition, planar pressure was based on the area of four independent electrodes. Moreover, the terminal for reading the gas passageway which can pass gas to an electrode substrate 13, the passage which can pass gas which is different in four electrodes, and the voltage of each electrode was installed (not shown).

[0058] Next, operation is explained. Pure hydrogen was passed in the electrode 13 and the fuel exhaust gas of four cells of a fuel cell stack was passed to independent each of Electrodes 12A-12D. The voltage produced between each electrode 2A, 2B, 2C, 2D, and an electrode 13 turns into voltage shown by the following (3) formulas according to the hydrogen partial pressure of the fuel exhaust gas which flows to each passage. Therefore, in the electrochemistry device of one sheet, the concentration of four gas was able to be measured simultaneously.

[0059] Here, how to know hydrogen concentration is explained. Pure hydrogen is passed to the pole of one side, and if the inspected gas containing hydrogen is introduced into another pole, since the potential E corresponding to Nemst's equation (3) will occur among two poles, the hydrogen concentration in inspected gas can be known by measuring the voltage.

[0060]

$$E = \text{radiographic}/2F \times \ln(\text{PR} / [\text{PH}_2]) \dots (3)$$

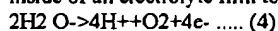
[0061] However, for a Faraday constant and T, absolute temperature and PH<sub>2</sub> are [ R / a gas constant and F ] the hydrogen gas partial pressure in inspected gas, and PR. The pressure of pure hydrogen is shown.

[0062] In addition, in this example, although four electrodes 12A-12D are allotted in the same flat surface, as long as it is by the independent electrode electronically [ plurality ], even if it is more than it, you may be less than [ it ] again. Moreover, it is possible to make it correspond to electrode 2A, 2B, 2C, and 2D of each, to divide into four, and to also make four cells which became independent electronically constitute from this example, although the counter electrode 3 was constituted from one sheet. In this case, one 4 times the voltage of this can be generated on an average by connecting four cells in series.

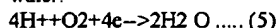
[0063] The example 8 of this invention is explained below example 8. Drawing 5 is drawing showing the concept of the electrochemistry device 51 of this example, this drawing (a) is the plan and this drawing (b) is the cross section. In drawing, 12R and 12W are the electrodes in the same flat surface which became independent electronically, and 52 is a septum (closure section) which intercepts electrode 12R from the open air. The electrode of the example 6 which plated platinum to the electrode substrate was used for Electrodes 12R and 12W. On the electrode 13 of 10cm angle, assembly carries the electrolyte film 14 of 12cm angle, and arranges in a coplanar further electrode 12W of 10cm angle which the hole with a diameter [ electrode 12R and the diameter of 1.5cm ] of with a diameter of 1cm opened on it. And the hotpress was performed on the same conditions as an example 1. In addition, planar pressure was based on the area of a counter electrode 13. And in order to prevent the open air flowing into electrode 12R, the cap (septum 52) with 0.2mm [ in thickness in which the hole for voltage terminals opened ], and a radius of 1.2cm of the semi-sphere type made of silicone rubber was put. And the electrode was pinched by the punching metal made from SUS304 with a thickness of 1mm which the 2mm hole opened, and the terminal for reading both punching metals and the voltage of electrode 12R was installed (not shown). At this time, one punching metal is electronically connected with electrode 12W, another punching metal will be electronically connected with an electrode 13, and electrode 12R has insulated electronically except the voltage terminal.

[0064] Next, operation is explained. This electrochemistry device 51 is placed into air, and the potential of 4V is impressed through a punching metal between the electrode 12W-counter electrodes 13. According to the formula 4 mentioned later, the moisture in the air which touches an electrode 13 a side serves as a hydrogen ion, and moves the inside of the electrolyte film 14 to the electrode 12W and 12R side. In electrode 12W, according to the formula 5 mentioned later, it is returned to hydrogen, and a hydrogen ion reacts with the oxygen in air immediately, and serves as water. On the other hand, in electrode 12R, as a hydrogen ion is shown in the formula 7 mentioned later, although an electron is obtained and it becomes hydrogen, since it is sealed by the rubber screen 52, it is full of hydrogen gas and only superfluous hydrogen flows out of between a rubber screen 52 and films 14.

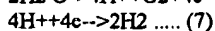
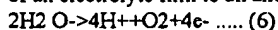
[0065] Movement of a hydrogen ion is explained here. If direct current voltage is impressed to two poles in air with moisture, according to electrochemical reaction, by the cathode side, the moisture in air will lose an electron, will serve as a hydrogen ion, and will move the inside of an electrolyte film to an anode side.



Although an electron is obtained on an anode and it is returned to hydrogen, a hydrogen ion reacts with the oxygen in air, and becomes water.



After all, the water by the side of a cathode will move to an anode side, and will lower the humidity of space to a cathode side. Moreover, if direct current voltage is underwater impressed, for example to two poles, according to electrochemical reaction, with a cathode, water will lose an electron, and will become a hydrogen ion and oxygen gas, oxygen gas will occur as a gas, and a hydrogen ion will move the inside of an electrolyte film to an anode side. On the other hand, in an anode, a hydrogen ion obtains an electron and generates it as hydrogen gas.



[0066] By the above, electrode 12R becomes a hydrogen reference electrode, and can separate and measure polarization of each pole in this electrochemical reaction by measuring the voltage of electrode 12R and a counter electrode 13, and electrode 12R and the voltage of electrode 12W. Then, since operation becomes possible with the maximum required voltage while risk of applying unusual voltage which causes the corrosion of an electrode to an electrode is avoidable, if the voltage applied among W-12 13 on the basis of this voltage is adjusted, miniaturization of equipment is attained.

[0067] An example 9 is explained based on drawing below example 9. Drawing 6 is the notional cross section of the electrochemistry device 53 of this example, and the electrode substrate with which 54 and 55 have a breakthrough 56 in drawing, and 14 are polyelectrolyte films. It is 2 the 400g [cm] superintendent officer who sintered after applying a single fiber with a diameter [ of SUS316L shown in the example 1 as an electrode substrate / of 12 micrometers ], and a length of 50-100mm to a opening machine. Cloth was used. When Nafion



117 of Du Pont is used for a poly membrane 14 as commercial elegance of a perfluoro sulfonic-acid film, they are electrode substrates 54 and 55 and a poly membrane 14 at 190 degrees C 50 kg/cm<sup>2</sup>. When a hotpress was performed and it unified by planar pressure, no less than 50 micrometers of fiber of an electrode substrate ate into the poly membrane 14, and it was eating away further so that the electrolyte film 14 might bury a breakthrough 56.

[0068] Next, operation is explained. Even when the electrochemistry device 53 of the unification object of the size of 10cm angle was manufactured, even if it had only an end by hand by the \*\*\*\* of an electrode substrate and dealt with it, this unification object did not cause distortion which cannot leave or cannot be reproduced. Furthermore, although the operation which carries out air dryness of this unification object at 100 degrees C after being underwater immersed was repeated 10 times, electrode substrates 54 and 55 and the poly membrane 14 were not separated at all, and the configuration of this unification object did not change this time, either. If it is a thing using the conventional electrode substrate and this examination is performed, cracking would enter with the hole as the starting point made in the electrode substrate, and the base material will have broken, separated and fallen. Moreover, when the electrode substrate 54 of this invention and the electric resistance between 55 were investigated, low resistance has held also between this being immersed and dryness. Since polyelectrolyte film 14 the very thing is expanded and contracted by the water content, it is thought by this examination that the adhesion between the electrode substrate poly membrane 14, a base material 54, and 55 has restricted membranous movement with having been very strong and the intensity of a metal fiber.

[0069] Moreover, since there is electric electric conductivity of the SUS316L itself about 10 times of the electric electric conductivity of carbon, the electron transfer in a base material is performed smoothly, and can keep a voltage loss low. Moreover, since the electrolyte film had been infiltrating into the breakthrough, therefore, supply of the water to a film became easy that the water containing being liquefied touches a direct electrolyte film. In addition, since gaseous transparency resistance will increase although the surface area of the unit-volume neighborhood increases and reaction area increases if a metal fiber uses the thing of a path smaller than this thing, it is desirable to use the cloth of the superintendent officer smaller than this time in that case. Conversely, what has a large diameter of fiber can also use a big superintendent officer's thing. By binding tight with a frame etc., when own \*\*\*\* of an electrode substrate is not so required, it is also possible to use the felt which does not sinter.

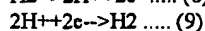
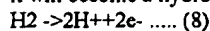
[0070] The below example 10. example 10 is explained. Drawing 7 shows the cross section of the electrochemistry device 58 of this example. 59 is the layer made for the fiber of a hydrophilic property. Here, the nonwoven fabric with a thickness [ of 1 micrometer of diameters of fiber of polyester ] of 2mm was used.

[0071] Next, operation is explained. When water is sprayed on this electrochemistry device 58, after water spreads in the hydrophilic layer 59 and is mostly distributed in a field at homogeneity, it reaches the electrolyte film 14 through an electrode 12. On the other hand, when water arises in the interface of the electrolyte film 14 and an electrode 12 by the reaction, superfluous water is sucked up by the hydrophilic layer 59, spreads in the whole field and is removed in it. In the whole base material, since space will be held and reactant gas can circulate the inside of it easily, gas required for a reaction continues being supplied to the electrolyte film 14 and electrode interface which are the reaction section. However, since an electron does not move as for the inside of organic fiber, the exchange with the electron of an electrode substrate 12 and the exterior is unsuitable for operation which takes out a terminal from between the hydrophilic layer 59 and the electrolyte films 14, or makes a hole in a part of hydrophilic layer 59, and it is necessary to make it let only a terminal pass, and passes a high current. Although natural fibers, such as cotton besides synthetic fibers, such as a polyamide and polyethylene, and hemp, are also considered in addition to this as fiber of a hydrophilic property, the synthetic fiber which can control the aperture in a layer free is desirable. In addition, satisfactory, even if it makes it still thicker, although the thing with a thickness of 2mm was used in the above-mentioned example, when applying to the side which discharges the water of a dehumidification element, since the direct electrolyte film 14 is not touched but it is operated at a room temperature, there is no need of taking a limit of material selection into consideration so much besides a hydrophilic property. Moreover, it is possible to also make the still better known water supply macromolecule on the outside support out of a hydrophilic layer.

[0072] The below example 11. example 11 is explained. Drawing 8 shows the electrochemistry device 61 which unified the electrode in which this example was crooked, and the electrolyte film, and is 62, the gas diffusion electrode in which 63 was crooked, and the electrolyte film (solid-state polyelectrolyte) with which 64 was crooked. Moreover, the gas passageway in which 65 was formed of the electrode 62, and 66 are the gas passageways formed of the electrode 63. Moreover, 68 and 69 are conductive separator boards which are this gas passageway and which already form an end. Moreover, 70 is an insulating spacer film and used the Teflon sheet with a thickness of 250 micrometers. On the occasion of incurvation of a gas diffusion electrode, especially special technology is unnecessary and can be carried out in the way of a well-known sheet metal press. Moreover, if the method currently indicated by JP,3-84866,A, JP,3-208261,A, JP,3-208262,A, etc., for example is taken on the occasion of the unification with electrodes 62 and 63 and the electrolyte film 64, it will become easy to make a film meet the configuration of the electrode substrate made crooked. Here, the gas passageway with a width of face of 2mm was formed with the sintering electrode substrate of sintering of SUS316L fiber.

[0073] Next, operation is explained. In this electrochemistry device 61, the hydrogen gas refining reaction which is one of the electrochemical reaction is performed. If the hydrogen gas which contains a carbon dioxide in an impurity is introduced into a gas passageway 65 and the voltage of 0.5V is applied to the separator board 68 to the separator board 69, the reaction of the formula 8 later mentioned on an electrode 62 will arise, only hydrogen gas serves as a proton, and it moves toward an electrode 63 in the inside of an electrolyte 64, and, therefore, is introduced into the reaction of the formula 9 mentioned later into a return passage 23 at hydrogen gas.

[0074] Here, if the hydrogen gas containing an impurity is poured and voltage is impressed to a cathode side, only hydrogen gas will react, it will become a hydrogen ion, and the inside of an electrolyte film will be moved to an anode side.



In an anode side, a hydrogen ion obtains an electron and is returned to hydrogen gas. Since only a hydrogen ion can move as for the inside of an electrolyte film, pure hydrogen can be obtained in an anode side.

[0075] Therefore, an electron flows from an electrode 62 to the separator board 69 and an electrode 63 through an external circuit through the separator board 68. Although the thickness of an electrode substrate is about 0.3mm in thickness, since conductivity is high, the loss of voltage does not almost have an electron transfer from top 65T of the passage where a path is the longest to a separator 68, either, and, as for a metal fiber, a reaction advances. Moreover, the electrolyte per simple plane area and the interfacial area of an electrode doubled at this time, by latus', reaction area was secured greatly and a lot of gas purification of it became possible. Furthermore, since passage is constituted for electrochemistry device itself, keeping the thickness of an electrode thin, the thickness of a unit cell becomes very thin and



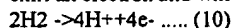
the layered product which carried out the laminating of the cell can constitute very compactly. Since contact pressure is maintainable also about a separator and inter-electrode contact resistance using the elasticity of a metal fiber, a voltage loss can be kept low.

[0076] The below example 12. example 12 is explained. Drawing 9 is the electrochemistry device 71 made to pinch with a charge collector with the elasticity of this example, and, for 72, an elastic charge collector and 73 are [ the charge collector of a counter electrode and 70 ] insulating spacers. While being able to use the metal and alloy which have austenite stainless steel, and well-known spring nature besides martensite system stainless steel as the quality of the material of the elastic charge collector 72, although it is usable, it is necessary to select the plastic film which applied the conductive layer in consideration of the corrosion resistance by the service condition. Here, in order to use it for the dehumidifier made to operate in a room temperature and air, what prepared the hole for gas transparency was used for the board with a thickness [ of SUS316L ] of 0.05mm. A hole can be created with well-known punching, and etching or machining. The size of the elastic charge collector 72 is the thing of 10cm angle, and is processed into radii with a radius of 10cm. The gas diffusion electrode is using the electrode of the example 6 which performed platinum plating on the SUS fiber felt. On a charge collector 73, assembly carries the elastic charge collector 72 so that the center of radii may turn to an outside for an electrode 12, the electrolyte film 14, and an electrode 13 from on the in piles, and it sandwiches it with a frame 74. By the product made from hard polyethylene with a thickness of 3mm, the frame 74 used the screw etc. for the charge collector 73, and fixed to it. Moreover, the terminal for passing current is attached in the elastic charge collector 72 (not shown).

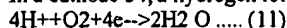
[0077] Next, operation is explained. If the voltage of 4V is applied to a charge collector 72 to a charge collector 73 in the atmosphere, the reaction of the formula 4 mentioned above on the electrode 12 arises, and the moisture in the air by the side of a charge collector 73 decomposes, a proton moves toward an electrode 13 in the inside of an electrolyte 14, and therefore it combines with the oxygen in air at the reaction of a formula 5, and it will become water and will come out. At this time, an electron flows from an electrode 12 to a charge collector 72 and an electrode 13 through an external circuit through a charge collector 73. Since the contact resistance between a charge collector 72 and an electrode 13 maintained contact pressure using the elasticity of a charge collector 72, it was able to keep the voltage loss low. Moreover, since the electrode and electrolyte film which are not unified were also used by this method, the process of unification was able to be skipped. In addition, although what gave the catalyst function to the electrode substrate itself was used in this example, especially the need that \*\*\*\* is united with the electrode may insert a catalyst sheet as there is not, for example, shown in JP,3-46764,A between an electrode substrate and an electrolyte film. Moreover, the total thickness is made very thinly with 0.7mm, and when it attaches in various devices, it can be constituted compactly.

[0078] The below example 13. example 13 is explained. Drawing 10 is the notional cross section of the fuel cell 81 which used the electrochemistry device 53 ( drawing 6 ) of the example 9 of this invention, the cathode with which 54 has a breakthrough 56, and 55 are anodes which similarly have a breakthrough 56, and 68 and 69 are separator boards which have a gas passageway made from carbon. The effective area of each electrodes 54 and 55 of the electrochemistry device 81 is 2 100cm. The thing was used. Moreover, Nafion 115 of Du Pont was used for the electrolyte film 14.

[0079] Next, operation is explained. The fuel cell 81 was warmed at 80 degrees C at the external heater (not shown), and the air which humidified the hydrogen gas humidified at 95 degrees C to the anode passage 66 at 50 degrees C in the cathode passage 65 was introduced. If between the separator boards 69-68 is connected with an external circuit, on an anode 55, by the reaction of a formula 10, hydrogen will emit an electron and will move toward a cathode 54 in the inside of a film 14 with water.



In a cathode 54, a hydrogen ion and oxygen are connected, an electron is obtained and water generates.



At this time, from the dew-point (95 degrees C) of anode gas, the temperature of a cell is a low, and in passage 66, superfluous moisture serves as a drop and it is condensed. While a drop is carried with the dynamic pressure of gas in the inside of passage 66, the electrolyte film 14 which is burying the breakthrough 56 in an electrode is touched, and a part is absorbed, and a part flows into the electrolyte film 14 interior along with the electrolyte film 14 in a breakthrough 56. Since the hydrophilic property is higher than an electrode 54, water moves into passage 65 along with a breakthrough 56, and the electrolyte film 14 which is burying the breakthrough 56 by the cathode 54 on the other hand although there is excessive moisture touches the circulating air, and evaporates. A high property is maintainable, even if supply of oxygen required for a reaction is maintained and it raises current density, since the water in the cathode electrode 54 can be promptly discharged while supply of water required for electrochemical reaction is attained by this.

[0080] The below example 14. example 14 is explained. Drawing 11 is the air dryer 91 which used the electrochemistry device 71 of the example 12 of this invention, and a hole is [ elastic \*\*\*\*\* and 922 are the apertures for dehumidification by which DC power supply and 93 were able to be opened in the dehumidified box, and 72 was able to open 94 in the side attachment wall of a box 93 and ] easy to be what joined the well-known metallic board created, for example with punching, and etching or machining. Here, the punching metal of SUS304 with a thickness of 0.5mm was used. In addition, so that an insulating layer may not arise, although [ this aperture 94 / in order to give work of a collecting electrode plate, ] painting [ no ], in the box 93, it insulated and it was fixed. Moreover, the frame 74 for dehumidification element fixation is formed in the outside of a box 93. The steel plate homogeneous as a box is attached in the frame 74 by the box by welding. Although the outside gave the same paint as a box, since it flowed with a charge collector 72, the inside presupposed no painting. Moreover, the size of a charge collector 72 is the thing of 10cm angle, and is carrying out bending to radii with a radius of 10cm. The electrochemistry device 71 is [ the electrode of the example 6 which performed platinum plating to the gas diffusion electrode at the SUS fiber felt, and ] Nafion 117 film at 150 degrees C Planar pressure 50 kg/cm<sup>2</sup> The unified thing was used. Heating temperature was made low for preventing the adverse current of water by lessening interlocking to the film of an electrode and keeping the real thickness of the electrolyte film 14 thick. Although the part and integrity are somewhat inferior, since it is pushed by the charge collector 72, it is satisfactory. Moreover, electrodes 12 are 400 g/cm<sup>2</sup> with a thickness of 400 micrometers. A superintendent officer's felt and an electrode 13 are 200 g/cm<sup>2</sup> with a thickness of 200 micrometers. A superintendent officer's felt is used. Assembly inserted the electrochemistry device so that an electrode 13 might turn to a box side along with a frame 74, and it inserted the charge collector 72 so that the center of radii might turn to the outside of a box from on the. And the terminal of + of DC power supply is connected to the aperture 94, and ground connection of the terminal of - was carried out to the box 93.

[0081] Next, operation is explained. If DC power supply are started, the voltage of 4V will be built over an aperture 94 to a box 93. Since the aperture 94 has flowed with the electrode 13 and the box 93 has flowed with the electrode 12 through frame 74 charge collector 72, the voltage of 4V is built over an electrode 13 to an electrode 12. Then, the reaction of a formula 3 arises on an electrode 13, and the moisture in the air in a box 93 decomposes, a proton moves toward an electrode 12 in the inside of an electrolyte 14, and therefore it combines with

the oxygen in the open air at the reaction of a formula 4, and it becomes water and comes out. At this time, an electron flows from an electrode 13 to a box 93, a frame 74, a charge collector 72, and an electrode 12 through DC power supply 92 through an aperture 94. Since the contact resistance between a charge collector 72 and an electrode 12 can maintain contact pressure using the elasticity of a charge collector 72, it can keep a voltage loss low. Moreover, by this method, since the electrochemistry device is only being fixed with the elasticity of a collecting electrode plate, in the case of repair, it is easily exchangeable only by extracting electrochemistry device 71 portion. When the volume of a box 93 was about 101, the relative humidity in a box 93 was able to be stopped lower about 40 to 50% than the atmosphere. Moreover, since dehumidification of a lot of gas can be performed when the electrochemistry device of an example 11 is used, if attached to the windward of the cooling fin of an air-conditioner, dew condensation within a fin can be prevented and an oxygen enrichment will become possible.

[0082] An example 15 is explained below example 15. Drawing 12 is the notional cross section of the gas concentration sensor 101 using the electrochemistry device 45 of an example 7 which has two or more polar zone which became independent electronically in the flat surface. In drawing, 12A, 12B, 12C, and 12D are the electrodes in the same flat surface which became independent electronically. The carbon paper with a thickness of 300 micrometers was used for the electrode material. On the electrode 13 of 10cm angle, the electrolyte film 14 of 12cm angle is carried so that it may overflow 1cm of circumferences at a time. Furthermore, as the independent electrode of 16 2cm angles is shown on it in the range which has an electrode 13 downward at drawing 13, each inter-electrode one arranges at the interval which is 6mm. And the hotpress was performed on the same conditions as an example 1. In addition, planar pressure is 2 an area of 64cm of 16 independent electrodes. It was made criteria. moreover, the passage 103A-103P which can pass gas which is different in the electrode of the gas passageways 102 and 16 which can pass gas to a counter electrode 13 was formed to 103A-103D drawing -- The voltage terminal 104 was connected to the electrode 13 through the collecting electrode plate (not shown). The voltage terminals 105A-105P were connected also to Electrodes 12A-12P. In addition, the polycarbonate was used for end plates 106 and 107. When using a conductive material like a metal or carbon, it is necessary to prevent from touching a current carrying part by the end plate 107 at an electrode, since it is necessary to insulate Electrodes 12A-12P electronically, although an end plate 106 can also use a conductive metallic material.

[0083] Next, operation is explained. Pure hydrogen was passed in passage 102 and the fuel exhaust gas of the cell of 16 of a fuel cell stack was passed to independent each of an electrode. The voltage produced between each Electrodes 12A-12P and electrode 13 turns into voltage shown by three formulas according to the hydrogen partial pressure of the fuel exhaust gas which flows to each passage. The hydrogen concentration of the exhaust gas of the cell of 16 sheets of a fuel cell stack was able to be simultaneously measured by acting as the monitor of the voltage between [ each voltage 104-105A ] - 104-105P. In this examination, methane reforming simulation gas (80% of hydrogen, \*\*\*\*\*) was passed as fuel to the fuel cell. Although each cell voltage in a stack had variation by measurement, this variation was not found in the thing based on what. However, when this concentration sensor was installed, the voltage between terminals of the electrode to which cell voltage let the exhaust gas of a low cell pass was higher than other cells, and it turns out that hydrogen concentration is extremely low. In a fuel cell stack, since the current which flows in each cell is the same, the same is said of the amount of the hydrogen gas to consume. Nevertheless, it turns out that it is shown that a low has little fuel with which hydrogen concentration flows into the cell, and a problem is in distribution of the gas within a stack, it became possible to perform optimization of passage structure and a quantity of gas flow by acting as the monitor of this voltage, and the property of a fuel cell stack improved sharply. [0084] In addition, although voltage with the electrode 13 which passed pure hydrogen was measured and gas concentration was measured in this example, if it is by the case where only the variation in concentration is measured like [ in this case ], it is also possible for the potential of a reference electrode 13 to be disregarded and to get to know a concentration distribution by acting as the monitor only of the variation in the potential of 12A-12P. For example, when the number of division electrodes is limited to two cells, the exhaust gas of the cell of ends toward which distribution of gas tends to incline is introduced into Passage 103A and 103B, the exhaust gas of a central cell is introduced into passage 102 and the voltage between passage 103A-103B exceeds constant value, it is also possible to take the operating method of making all quantities of gas flow increasing, and keeping operation of a stack normal.

[0085] The below example 16. example 16 is explained. the cell 111 with which drawing 14 used the electrochemistry device 51 of an example 8 -- it is -- 112 -- a cell container and 13 -- an anode and 12W -- a cathode and 12R -- for a silicon nature rubber screen and 115, as for an oxygen exhaust port and 117, a water feed hopper and 116 are [ an independent cathode and 113 anode charge collector and 114 / a cathode charge collector and 52 / a hydrogen exhaust port and 118 ] the current (voltage) terminals to electrode 12R In addition, in an electrode, it is 0.1mm superintendent officer in thickness 100 g/cm<sup>2</sup>. What carried out indium plating of what carried out platinum plating at the electrode 13 was used for Electrodes 12W and 12R using stainless steel fiber sintering cloth. The Nafion film was used for the electrolyte film 14 as a perfluoro sulfonic-acid film.

[0086] Next, operation is explained. If direct current voltage is impressed among W-electrode 12 13, on an anode 13, water will decompose by the reaction of six formulas, oxygen will occur, and, on the other hand, hydrogen gas will be generated in cathode 12W according to seven formulas. Moreover, when the terminal 118 was connected with the cathode too hastily, hydrogen occurred also from 12R, the inside of a rubber screen 52 was filled with hydrogen, and the part was overflowing from the crevice between a rubber screen 52 and a film 14. It is current density 500 mA/cm<sup>2</sup> Although inter-electrode voltage was about 2V when passed the grade, if operation is continued for a while with this current density, voltage would rise and current will not flow. Although the voltage of a terminal 118 and an anode 13 was changing when the voltage between the terminal when separating a cathode pole from a terminal 118, an anode or a terminal, and a cathode was measured, and voltage rose, the voltage between a cathode and a terminal 118 hardly changed. Therefore, since that the property of a cell 111 became bad guessed that a problem was in an anode electrode side, when it examined by being cautious of an anode, it is the bubble of oxygen generated on the anode, and it turns out that supply of water was left. Therefore, when the electrode substrate of an anode was changed into the thing of half thickness, elevation of voltage did not take place. Thus, when the circuit of a terminal 118 was separated for every fixed time to be on stream and voltage with an electrode 13 was measured, the case where a problem is in a cell 111, and the part which has a problem just before being able to trace a cause or breaking down, when a property begins to get worse could be repaired.

[0087] The below example 17. example 17 is explained. Drawing 15 is the gas purifier 121 which used the electrochemistry device 61 of an example 11. The bottom portion of an electrochemistry device (it expresses as one curve) is an anode 62, and a top portion is a cathode 63. Electrode substrates are superintendent officer 300 g/cm<sup>2</sup> and a sintering electrode substrate with a thickness of 250 micrometers of SUS316L fiber, and formed the gas passageway with a width of face [ of 2mm ], and a height of 2mm. The gas passageway in which 65 was formed of the electrode 62, and 66 are the gas passageways formed of the electrode 63. The conductive end plate 68 and whose 69 are this gas passageway and which already forms an end, and 122 are conductive separator boards, and it means that they had connected four refiners in series electrically by this. The sign of A-D was attached to four devices, respectively. Each separator board 122 was constituted

from a board of SUS304, and Teflon resin was used for the manifold to the gas passageway by a gas seal and the crooked electrode with an electrolyte film (not shown). Moreover, finally a layered product is 0.2 kg/cm<sup>2</sup>. Between end plates 8-9 is suppressed by planar pressure. [0088] Next, operation is explained. If the hydrogen gas which contains a carbon dioxide in an impurity is introduced into gas passageways 65A-65D and the voltage of 2V is applied to an end plate 68 to an end plate 69, the reaction of a formula 8 will arise on electrode 62A - 62D, only hydrogen gas serves as a proton, and moves toward Electrodes 63A-63D in the inside of electrolyte 14A - 14D, and, therefore, it is introduced into the reaction of a formula 9 into return-passage 66A - 66D. Moreover, since the electrolyte per simple plane area and the interfacial area of an electrode doubled at this time, the almost double current at the time of using a monotonous type electrode was able to be passed. This is able to process double capacity to the gas purifier of the same area of base. Furthermore, since per sheet and thickness became small 30 percent compared with the case where passage is dug in a separator board since passage was constituted from electrochemistry device 61 the very thing, keeping the thickness of an electrode thin, height became abbreviation 2/3. For this reason, about 1/3 of sizes to the gas purifier of the same monotonous type size was set to 3, and the remarkable miniaturization was attained. Moreover, since a separator did not need to be trenched, like this example, commercial sheet metal could be used and cost has decreased sharply.

[0089]

[Effect of the Invention] As mentioned above, according to invention of a claim 1, since the gas diffusion electrode was constituted like either the textile fabrics of a metal fiber, or a nonwoven fabric, it is effective in the ability to prevent deformation of a solid-state polyelectrolyte mechanically.

[0090] Since the gas diffusion electrode was constituted like either \*\*\*\*\* of a metal fiber and organic fiber, or a \*\*\*\* nonwoven fabric, while being able to prevent deformation of a solid-state polyelectrolyte mechanically according to invention of a claim 2, a gas required for a reaction is made to flow into an active zone easily, and it is effective in the ability to supply water required for a reaction to the reaction section easily in the state of a liquid.

[0091] According to invention of a claim 3, about a metal fiber, since two sorts were constituted as mentioned above, the electric resistance of a gas diffusion electrode can be made small, and there is any one sort of following I - HO or an effect of reducing a voltage loss.

I . austenite stainless steel SUCHIRURO . periodic-table 5A group element HA . periodic-table 6A group element NI . periodic-table 8 group element HO . periodic-table 1B group element [0092] Since according to invention of a claim 4 it constituted so that the fluoridation of the metal fiber might be carried out, there is an effect which can flow a gas required for a reaction into an active zone easily by a gas diffusion electrode's being able to prevent deformation of a solid-state polyelectrolyte mechanically, being able to make electric resistance small, and giving water repellence.

[0093] According to invention of a claim 5, since organic fiber was constituted like water-repellent fiber, there is an effect which can flow a gas required for a reaction into an active zone easily.

[0094] According to invention of a claim 6, since organic fiber was constituted like hydrophilic fiber, a gas required for a reaction can be made to flow into an active zone easily, and it is effective in the ability to supply water required for a reaction to the reaction section easily in the state of a liquid.

[0095] Since according to invention of a claim 7 it constituted so that a catalyst particle might be supported to a gas diffusion electrode, electrochemical reaction can be smoothly advanced by the catalysis and it is effective in reducing voltage required for a reaction.

[0096] Since according to invention of a claim 8 it constituted so that a catalyst particle might be used as a periodic-table 8 group element, electrochemical reaction can be advanced still more smoothly by catalyses, such as Pt, and it is effective in reducing voltage required for a reaction further.

[0097] According to invention of a claim 9, since it constituted in the metal fiber so that a different metal from this metal fiber might be plated, electrochemical reaction can be smoothly advanced to it by the catalysis which can prevent the corrosion of a metal fiber with this metal, and this metal has, and the effect of reducing voltage required for a reaction is in it.

[0098] According to invention of a claim 10, since one sort was constituted as mentioned above, the corrosion of a metal fiber can be effectively prevented with this metal, and electrochemical reaction can be advanced still more smoothly by the catalysis of this metal, and there is an effect chosen from the periodic-table 8 group element and the periodic-table 1B group element in the aforementioned metal of reducing voltage required for a reaction further.

[0099] Since at least one side of a gas diffusion electrode was constituted like two or more polar zone which was formed in the same flat surface and insulated electronically according to invention of a claim 11, the voltage of each polar zone can be changed and it is effective in the voltage which plurality became independent of by the thin device of one sheet being obtained.

[0100] Since according to invention of a claim 12 it constituted so that the closure section which covers this polar zone on the whole to the polar zone, and has airtightness might be prepared, when this polar zone contacts specific gas, potential peculiar to the gas composition in space is shown, and there is an effect which can have the potential used as the criteria as a reference electrode.

[0101] Since according to invention of a claim 13 it constituted so that two or more breakthroughs might be formed at least in one side of a gas diffusion electrode and a part of aforementioned solid-state polyelectrolyte might be made to infiltrate into it at these breakthroughs, the adhesion of a gas diffusion electrode and a solid-state polyelectrolyte can be raised, and it is effective in the ability to prevent deformation of this solid-state polyelectrolyte.

[0102] Since according to invention of a claim 14 it constituted so that the layer which consists of either textile fabrics of hydrophilic fiber or a nonwoven fabric might be formed in one [ at least ] front face of a gas diffusion electrode, it is effective in preventing that waterdrop piles up near the interface of a gas diffusion electrode and a solid-state polyelectrolyte.

[0103] Since the electrode area per unit area can be made to be able to expand, electrochemical reaction can be smoothly advanced, since according to invention of a claim 15 it constituted so that a gas diffusion electrode might be made crooked and it might unite with the aforementioned solid-state polyelectrolyte, and small space can be used effectively, it is effective in the remarkable miniaturization of equipment being attained.

[0104] According to invention of a claim 16, since the aforementioned gas diffusion electrode was constituted like the gas diffusion electrode of ten a claim 1 or given in any 1 term, deformation of a solid-state polyelectrolyte can be prevented mechanically, the electrode area per unit area can be made to expand, and it is effective in advancing electrochemical reaction smoothly.

[0105] Since according to invention of a claim 17 it constituted so that the aforementioned solid-state polyelectrolyte and a gas diffusion electrode might be pinched with the charge collector which has elasticity, the contact resistance between a solid-state polyelectrolyte, a gas diffusion electrode, and each charge collector can be reduced, voltage required for electrochemical reaction can be reduced, and it is

effective in a manufacturing process becoming easy.

---

[Translation done.]